



# **Lattice-Boltzmann-Simulation in faserbasierten Mikrostrukturen**

Jan Philipp Brinkmann





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institute of Energy and Climate Research  
Electrochemical Process Engineering (IEK-3)

# **Lattice-Boltzmann-Simulation in faserbasierten Mikrostrukturen**

Jan Philipp Brinkmann

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 232

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-995-9



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber  
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH  
Zentralbibliothek, Verlag  
52425 Jülich  
Tel.: +49 2461 61-5368  
Fax: +49 2461 61-6103  
E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
[www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2014

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 232

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-995-9

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/juwel](http://www.fz-juelich.de/zb/juwel)

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder  
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder  
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

von Jan Philipp Brinkmann

## KURZFASSUNG

Die Brennstoffzelle unterliegt dem Prinzip aus Sauerstoff und Wasserstoff Strom zu gewinnen. In der realen Anwendung verbirgt sich dahinter meist ein sehr komplexes System, das die Grundlage für verschiedenste Forschungsbereiche bietet. Wesentlich für eine effiziente Funktionsweise ist das möglichst optimale Management der ein- und ausströmenden Gase. Für Polymerelektrolytmembran-basierte Brennstoffzellen trägt die Gasdiffusionsschicht entscheidend zur Gleichverteilung des Gases an der Elektrode bei. In Simulationen wird diese Schicht meist nicht gesondert aufgelöst, sondern geht als experimentell ermittelter Parameter in das jeweilige Modell ein. Die vorliegende Arbeit knüpft an diesem Punkt an und liefert ein auf strömungsmechanischen Methoden beruhendes Verständnis über die mikrometergroße Struktur der Gasdiffusionsschicht und über ihre Wirkungsweise in der Brennstoffzelle. Als virtuelle Struktur für die mit Gas durchströmte Schicht werden dabei verschiedene Datenquellen genutzt. Zum einen werden tomographische Aufnahmen realer Strukturen verwendet, zum anderen ein an der Universität Ulm entwickeltes stochastisches Modell. Um den stochastischen Eigenschaften des Materials Genüge zu tragen wird die Stichprobe des jeweiligen Materials entsprechend groß gewählt.

So erfolgt die Strömungssimulation auf der Basis des parallelisierten Lattice-Boltzmann-Algorithmus auf einem makroskopischen Bereich. Die mikroskopische Struktur der Gasdiffusionsschicht wird dabei bis in die Faserstruktur aufgelöst und bei der Analyse berücksichtigt. Aus der Validierung des Algorithmus mit experimentellen und analytischen Referenzwerten für verschiedene Geometrien lassen sich die Werte für die vielfach in der Literatur verwendeten Eingangsparameter optimieren. Hierbei wird das *single-relaxation-time*-Verfahren mit der *multi-relaxation-time*-Methode verglichen. Die Voraussetzungen für einen generellen Einsatz des Algorithmus, insbesondere in Bezug auf Gasdiffusionsschicht-Strukturen, sind damit gegeben. Der optimierte Lattice-Boltzmann-Algorithmus wird im Folgenden verwendet, um mit Strömungssimulationen auf der Basis von Kennzahlen die Strukturdaten im Vergleich mit experimentellen und analytischen Ergebnissen zu charakterisieren. Außerdem werden aus der Analyse von Minimalbeispielen, also auf bestimmte Merkmale reduzierte Geometrien, die Eigenschaften der Materialien, die sich auf den Gasfluss auswirken, identifiziert. So können Gemeinsamkeiten zwischen verschiedenen Realisierungen des stochastischen Modells und den tomographisch ermittelten Daten entdeckt werden. Durch dieses Verständnis kann künftig ein Abbild des realen Materials schnell und kostengünstig simuliert werden. So entsteht prinzipiell die Möglichkeit der planbaren, virtuellen Konstruktion eines Gasdiffusionsschichtmaterials.

Im letzten Kapitel wird der Bezug zur Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle hergestellt, der im Allgemeinen durch die Wahl der Randbedingungen gegeben ist. Die Gleichverteilung der Gasströmung an der Elektrode wird in einem Kanal-Steg-Szenario, das auf tomographischen Aufnahmen basiert, untersucht. Dies geschieht sowohl für ein einkomponentiges Anoden-Szenario als auch für ein Mehrkomponenten-System der Kathode. Für eine Gaskomponente kann gezeigt werden, wie die Gasverteilung von der Kompression der Brennstoffzelle abhängt. Außerdem wird nachgewiesen, dass bei etwa 30 % Kompression keine Verbesserung der Verteilung mehr auftritt. Für zwei Gase im Kathoden-Szenario wird die prinzipielle Möglichkeit der Verwendung des zweikomponenten-Modells für die Brennstoffzelle gezeigt.



# LATTICE-BOLTZMANN SIMULATION IN FIBER BASED MICROSTRUCTURES

by Jan Philipp Brinkmann

## ABSTRACT

Despite its simple underlying principle to gain electrical current from hydrogen and oxygen, a real fuel cell application is a complex system studied in various areas of science. An essential way to raise the efficiency of an  $H_2$ - $O_2$  fuel cell is to ensure an optimal flow of in- and outgoing gases. This can be done through a gas diffusion layer that supports an equal distribution along the electrode in polymer electrolyte membrane-based fuel cells. In simulations, the detailed structure of the gas diffusion layer is commonly not taken into account and is integrated in fuel cell models as a single parameter. In this thesis, concepts from fluid dynamics are used to gain a fundamental understanding of the gas diffusion layer's structure and its influence on the fuel cell. The virtual structure used for the gas diffusion layer is based either on data generated from real 3D-tomograms or on data generated from a statistical model developed by the Universität Ulm.

The fluid simulation is done with the Lattice-Boltzmann algorithm. After parallelization of code, the simulation can be done on a macroscopic scale. This leads to conclusions well beyond mere statistical effects. Moreover, the microscopic structure is resolved to the level of single fibers, whose influence on results can thus be considered in the analysis. Relying on the validation of the algorithm on experimental and analytical references, an ideal set of input parameters can be determined. Within this study, the single and the multi-relaxation-time method are compared. Thus, a tool is established for an application in fluid dynamics in general as well as in gas diffusion layer-like structures.

The now optimized Lattice-Boltzmann algorithm allows a comprehensive fluid dynamical analysis of different gas diffusion layer materials. Based on characteristic numbers, the statistically modeled structures as well as the real tomogram-data are studied in comparison with experimental and analytical data. Subsequently, the analysis of minimal examples is used to identify the structure's properties that influence the gas flow essentially. From here, conclusions about different realizations of the virtual material can be drawn to find the similarities between the 3D-tomograms and the virtual model. In this way, an almost one to one virtual copy of the underlying gas diffusion layer can be constructed and comes along with clear advantages: The virtual construction of a sample of the statistical model on the computer can be realized quickly at low costs. This is necessary to facilitate the virtual construction of gas diffusion materials in order to take the statistical properties of the material into account.

Throughout the underlying work, the operating conditions of the high temperature polymer electrolyte fuel cell enter the model through the boundary conditions. Being of superior importance for the efficiency of this fuel cell, the gas distribution along the electrode is analyzed in a channel-land scenario on the basis of the tomographic data. A one-component anode scenario as well as a two-component system on the cathode side is studied. For the one-component case, it is shown how the gas distribution along the electrode depends on the compression of the fuel cell and that the limit for the volume compression should not exceed 30 %. For the two-component case the gas distribution is checked on plausibility with regard to the earlier results. This shows in principle that the underlying two-component model can be used for the cathode simulation.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Ziele der Arbeit</b>	<b>3</b>
<b>3. Grundlagen und Literatur</b>	<b>7</b>
3.1. Motivation . . . . .	7
3.2. Geometrie-Modelle . . . . .	9
3.3. Strömungssimulation in der HT-PEFC . . . . .	10
3.3.1. Grundprinzip und Anwendung . . . . .	10
3.3.2. Betriebsbedingungen . . . . .	12
3.3.3. Strömungssimulation - Grundlagen . . . . .	13
3.3.4. Strömungssimulation - Brennstoffzelle . . . . .	15
3.4. Lattice-Boltzmann-Methode: Vom Gas zu Lattice-BGK . . . . .	16
3.4.1. Herleitung der Boltzmann-Gleichung . . . . .	16
3.4.2. BGK-Näherung . . . . .	20
3.4.3. Lattice-BGK-Methode . . . . .	21
3.4.4. Eigenschaften der BGK-Gleichung . . . . .	24
3.5. Lattice-Boltzmann-Methode: Erweiterungen . . . . .	25
3.5.1. Randbedingungen . . . . .	25
3.5.2. MRT/SRT . . . . .	26
3.5.3. Mehrphasen und Mehrkomponenten . . . . .	27
3.6. Klassifizierung von Strömung . . . . .	31
<b>4. Ablauf einer Simulation</b>	<b>33</b>
<b>5. Einkomponenten-Modell</b>	<b>37</b>
5.1. Leerer Kanal . . . . .	38
5.1.1. Aufbau . . . . .	38
5.1.2. Validierung . . . . .	38
5.1.3. Parameter-Bestimmung . . . . .	41
5.2. GDL: generelle Analyse . . . . .	47
5.2.1. Aufbau . . . . .	47
5.2.2. Vergleich von MRT und SRT . . . . .	49
5.2.3. Abmessungen des Simulationsgebietes . . . . .	52
5.2.4. Analyse verschiedener GDLs . . . . .	56
5.3. GDL: Validierung des Geometrie-Modells . . . . .	60
5.3.1. Parameter-Identifizierung . . . . .	60
5.3.2. Virtuelle Anpassung an die Realdaten . . . . .	64
5.4. GDL: Fehleranalyse . . . . .	69
5.4.1. Skalierung . . . . .	69

5.4.2. Vergleich von MRT und SRT . . . . .	72
5.5. Kanal-Steg-Szenario . . . . .	74
5.5.1. Aufbau . . . . .	74
5.5.2. Ergebnisse . . . . .	75
<b>6. Mehrkomponenten-Modell</b>	<b>85</b>
6.1. Konvektion und Diffusion des LB-Algorithmus . . . . .	85
6.2. Validierung im leeren Kanal . . . . .	86
6.3. Kanal-Steg-Szenario . . . . .	89
<b>7. Diskussion</b>	<b>93</b>
<b>8. Zusammenfassung</b>	<b>99</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>101</b>
<b>A. Physikalische Größen auf dem Gitter</b>	<b>111</b>
<b>B. Matrizen und Eigenwerte im MRT-Algorithmus</b>	<b>113</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>116</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>122</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>126</b>

# 1. Einleitung

Strömungen in porösen Medien sind ein weit reichendes Feld der Physik mit Beispielen in Natur und Technik. Wann immer ein Gas oder ein Fluid auf eine durchlässige Struktur fester Materie trifft, wird ihr Verhalten durch dieselben grundlegenden Gleichungen dargestellt. Dabei ist es faszinierend, dass das Verhalten des Meeres [1] mit denselben Gleichungen beschrieben werden kann wie die Luftzirkulation in einer Philharmonie [2]. Wenn allgemeine Prinzipien viele Dinge erklären, ist es immer besonders interessant, die dahinter liegenden Konzepte genauer zu untersuchen. Idealerweise wird die untersuchte Methode kombiniert mit einem Feld, das schon für sich genommen ein lohnendes Forschungsobjekt ist.

Die Brennstoffzellenforschung ist so ein Feld: Schon vor über 150 Jahren wurde ihr grundlegendes Prinzip von Schönbein und Grove [3] beschrieben. Aktuell beginnt sich diese Technologie in einigen Bereichen zu etablieren und ist auf der Schwelle, eine wesentliche Rolle in der Lösung des Energieproblems einzunehmen. Sie ist deswegen so interessant, weil ihr grundlegendes Prinzip, aus Wasserstoff und Sauerstoff Energie zu gewinnen und dabei Wasser und Strom zu produzieren, einen Lösungsansatz für das globale Klimaproblem ausmacht. In dieser Arbeit wird mit der Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (*high temperature polymer electrolyte fuel cell*, HT-PEFC) ein Brennstoffzellen-Typ betrachtet, der eine Brückentechnologie zwischen herkömmlichen und erneuerbaren Energien darstellt. Durch ihre hohe Kohlenmonoxid-Verträglichkeit kann sie mit Reformatgas aus Diesel oder Kerosin betrieben werden. In diesem, wie auch in vielen anderen Brennstoffzellen-Typen, sind poröse Strukturen enthalten, durch die die eingeleiteten Gase strömen. Die Gasdiffusionsschicht (*gas diffusion layer*, GDL) ist eine solche Struktur. Sie soll für eine homogene Verteilung des Gases an der Elektrode sorgen.

Das Ziel dieser Arbeit besteht darin, eine generelle Methode der Strömungssimulation auf die GDL der HT-PEFC anzuwenden. Mit diesem Ansatz soll einerseits das Verständnis der Gasströmung in der GDL erweitert, andererseits eine prinzipielle Untersuchung der Methode für Strömungen in porösen Medien durchgeführt werden. Der Bezug zur HT-PEFC wird über die angelegten Randbedingungen und die in der Simulation verwendeten Materialien hergestellt. Dabei sollen GDL-Realdaten sowie stochastische GDL-Modelle untersucht und analysiert und so die Einflüsse dieser porösen Strukturen auf die Strömungseigenschaften besser verstanden werden. Die Vorteile, die daraus entstehen, Modelle als grundlegende Geometrien für die GDL zu verwenden, werden bei diesen Analysen an vielen Stellen genutzt. Letztlich soll mit Hilfe der Strömungssimulation ein vorhandenes Modell dahingehend angepasst werden, dass es in Bezug auf die Strömungseigenschaften dem realen Material möglichst nahe kommt. Neben der Analyse von Strukturen ist die Strömungssimulation in möglichst realen Betriebsbedingungen der HT-PEFC ein grundlegender Baustein dieser Arbeit. Die Herausforderung, die sich dabei stellt, ist es, die drei Modelle der Brennstoffzelle, der GDL und der Strömungssimulation erfolgreich zu kombinieren.

Die verwendete Methode für die Strömungssimulation ist der bereits Ende der 1980er Jahre entwickelte Lattice-Boltzmann-Algorithmus (LB-Algorithmus), eine diskretisierte Näherung der Boltzmann-Gleichung. Dabei werden der Algorithmus sowohl in seiner ursprünglichen Version als auch einige seiner Erweiterungen verwendet. Der Algorithmus ist durch seine Form leicht zu



parallelisieren, was die Voraussetzung schafft, mit Hochleistungsrechnern auf vielen tausend Prozessoren gleichzeitig zu rechnen. Durch diese Rechenleistung ist es möglich, die Gasströmung in makroskopisch relevanten dreidimensionalen Strukturen der Brennstoffzelle zu simulieren. Während der Arbeit wird Wert darauf gelegt, den physikalischen Bezug zwischen Algorithmus und Brennstoffzelle eng zu diskutieren. Oft wird außerdem auf Minimalbeispiele zurückgegriffen, um zunächst prinzipielle Konzepte zu untersuchen beziehungsweise zu verstehen. Strukturell werden, wie im folgenden Kapitel genauer erklärt, verschiedene, immer komplizierter werdende Modelle der Brennstoffzelle mit grundlegenden Fragestellungen kombiniert. So werden in Unterabschnitten abgeschlossene Fragestellungen mit kapitelübergreifenden Themen verknüpft.

## 2. Ziele der Arbeit

Die Fragestellungen dieser Arbeit setzen sich aus mehreren Teilbereichen zusammen: Der LB-Ansatz wird dazu verwendet, Strömungssimulationen in stochastischen porösen GDL-Strukturen, die in HT-PEFCs verwendet werden, durchzuführen. Hier soll kurz erläutert werden, welche Fragestellungen sich aus den einzelnen Teilbereichen ergeben und wie sie in die Arbeit eingegliedert sind.

Grundsätzlich orientiert sich die für die Strömungssimulation verwendete Geometrie an der HT-PEFC, deren Schema in Abbildung 2.1 dargestellt ist. Die vier Teilbereiche dieser Arbeit sind jeweils mit einem geometrischen Teilbereich in diesem Schema verbunden und mit römischen Ziffern gekennzeichnet. Die Vorgaben für die Strömungssimulation orientieren sich jeweils an der Brennstoffzelle. Zudem werden die verwendeten Geometrien im Laufe der Arbeit immer komplexer und die Fragestellungen ändern sich dementsprechend. Somit bauen die in den verschiedenen Kapiteln durchgeführten Simulationen so aufeinander auf, dass sie am Ende der Arbeit ein möglichst reales, zusammenhängendes Modell in den Teilbereichen Strömungssimulation, Brennstoffzelle und GDL-Struktur abbilden. Thematisch ordnen sich die einzelnen Geometrien in Abbildung 2.1 wie folgt den Fragestellungen zu, die im Einzelnen diskutiert werden sollen:

- Ia:**            **“leerer Kanal“:** LB-Validierung (Kapitel 5.1)
- Ib:**            **“GDL-Untersuchung“:** Strömung in stochastischen GDL-Strukturen (Kapitel 5.2-5.4)
- II:**            **“Kanal-Steg-Szenario“:** Brennstoffzelle: GDL-Funktion (Kapitel 5.5)
- III, IV:**       **“Kathode“:** Brennstoffzelle: realer Betriebsfall (Kapitel 6)

**Ia - “leerer Kanal” → LB-Validierung** Mit dem rechteckigen leeren Kanal wird zunächst die denkbar einfachste Geometrie analysiert. In Abbildung 2.1 wird deutlich, in wie weit sie mit einer realen Brennstoffzelle zusammenhängt. Es wird zunächst der Ausschnitt I ohne GDL-Struktur betrachtet. Diese Struktur wird in der Strömungsmechanik oft studiert und die Strömungsprofile, die sich dort ausbilden, sind hinreichend bekannt. Somit eignet sich der leere Kanal, um zunächst die Software und den Modellansatz zu validieren. Damit wird auch der Fehler der Methode bestimmt und analysiert.

Eine weitere Fragestellung gilt den LB-Algorithmen. Für die beiden Algorithmen *single-relaxation-time* (SRT) und *multi-relaxation-time* (MRT) sollen sinnvolle Bereiche für ihre Eingangsparameter abgesteckt werden. Die Eingangsparameter, die dabei im Speziellen geprüft werden, sind die Gitterauflösung und der Kollisionsparameter  $\omega$ .

**Ib - “GDL-Untersuchung” → Strömung in stochastischen GDL-Strukturen** Mit dem validierten LB-Code ist es nun möglich, in einem bestimmten Parameterbereich Strömungen zu simulieren. In diesen Abschnitten wird der Ausschnitt I in Abbildung 2.1 nun mit eingezeichneter GDL als grundlegende Geometrie für die Strömungssimulationen verwendet. Die vorgestellten Konzepte lassen sich auf ähnliche Geometrien übertragen.

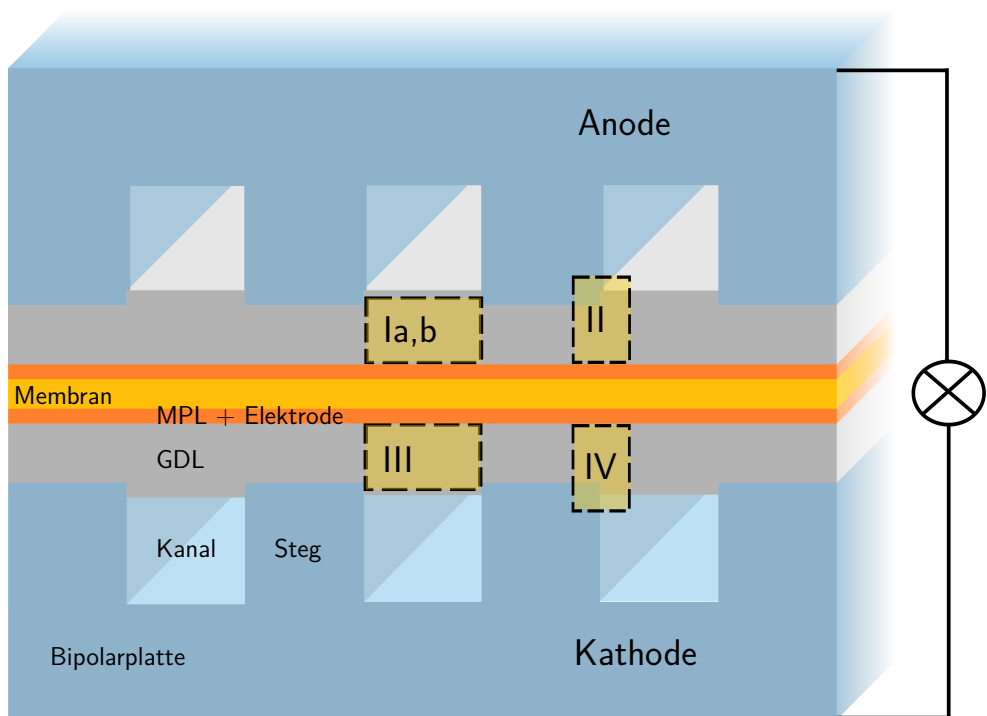


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung der HT-PEFC.

Nach der Analyse des leeren Kanals wird zunächst die wichtige Fragestellung diskutiert, ob sich die Erkenntnisse auf diese wesentlich komplexere Geometrie übertragen lassen. Dabei werden erneut für MRT- und SRT-Simulationen Abhängigkeiten vom Kollisionsparameter untersucht (Kapitel 5.2.2). Anschließend stellen die Analysen der nötigen Abmessungen für die GDL-Struktur in Kapitel 5.2.3 weitere wichtige Grundlagen zur Strömungssimulation in GDL-Strukturen dar. Wie sich die stochastische Struktur der GDL auf die Strömungseigenschaften auswirkt, soll eine weitere Fragestellung dieses Kapitels sein. Auf dieser Grundlage eignet sich die LB-Methode für die Analyse von zwei unterschiedlichen GDL-Materialien, einem Papier und einem Vlies im Abschnitt 5.2.4. Dabei werden die Ergebnisse auf Plausibilität überprüft sowohl qualitativ und relativ zueinander als auch im Vergleich mit experimentellen Ergebnissen. Die untersuchten GDL-Materialien entsprechen sowohl Realdaten als auch GDL-Modellen. Die GDL-Modelle sind an der Universität Ulm entwickelte Geometrien, die im stochastischen Sinne den Realdaten entsprechen. Eines dieser Modelle wird im Abschnitt 5.3.2 genauer analysiert. Dabei steht im Fokus, die Ergebnisse der Strömungssimulation mit der mikroskopischen GDL-Struktur zu verknüpfen. Es soll ein Verständnis entwickelt werden, welche Einflüsse bei der Konstruktion des GDL-Modells zu welchen Strömungseigenschaften führen. Mit diesem Verständnis soll anschließend mit Hilfe der LB-Strömungssimulation eine GDL konstruiert werden, die in ihren Strömungseigenschaften den Realdaten möglichst ähnlich ist. Das erhaltene Modell kann in Kapitel 5.4 genutzt werden, um die Skalierung der Geometrie und den bereits durchgeführten SRT/MRT-Vergleich mit stochastischen Methoden systematisch zu untersuchen und mögliche Fehler zu identifizieren.

---

**II - "Kanal-Steg-Szenario" → Brennstoffzelle: GDL-Funktion** Der Gastransport durch die GDL in der Brennstoffzelle wird in Kapitel 3.3.1 beschrieben. Die Gasverteilung, die der Gastransport durch das jeweilige GDL-Material an der Elektrode hervorruft, ist bisher wenig untersucht. Mit einer optimaleren Verteilung soll letztendlich die Effizienz der Brennstoffzelle erhöht werden. Im Kapitel 5.5 wird ein Szenario vorgestellt, das, wie in Abbildung 2.1 zu sehen, genau den Übergang, in dem der Transport des Gases unter den Steg stattfindet, beschreibt. Die wesentliche Größe, die hier diskutiert wird, ist die Homogenität der Gasversorgung an der Grenze zur Elektrode. Ist diese ungleichmäßig, wird die Leistung der Brennstoffzelle beeinflusst. Mit der Analyse soll daher das Verständnis der Gasströmung in einem Kanal-Steg-Szenario verbessert werden. Im Zuge dessen wird ergründet, in wie weit sich die Komprimierung der GDL auf die Versorgung der Elektrode auswirkt.

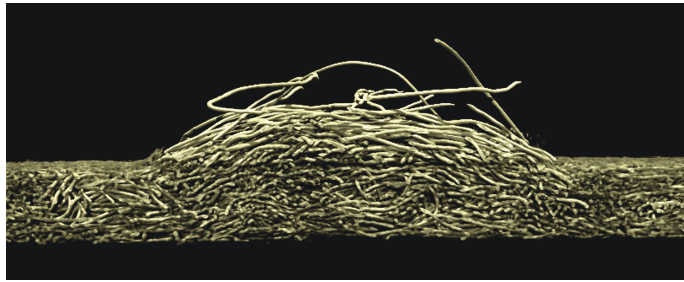
**III, IV - "Kathode" → Brennstoffzelle: realer Betriebsfall** Im letzten Kapitel wird die Zweikomponenten-Strömung von Sauerstoff und Wasserdampf auf der Kathodenseite der HT-PEFC simuliert. Sowohl diffusive als auch konvektive Prozesse sind hier von Bedeutung. Zunächst wird mit dem Ausschnitt III in Abbildung 2.1 die Mehrkomponenten-Strömung validiert. Dazu wird zunächst der Fall untersucht, in dem der Ausschnitt III ohne GDL charakterisiert wird. Das Ziel ist es dann, aus dem Unterschied zwischen der Strömung im leeren Kanal und der GDL-Struktur den effektiven, also durch die GDL-Struktur abgewandelten Diffusionskoeffizienten in der Simulation zu bestimmen. Dieser wird anhand der bekannten Lösung validiert. Im Folgenden wird dann die Mehrkomponenten-Strömung für ein Kanal-Steg-Szenario, wie in Ausschnitt IV in Abbildung 2.1 dargestellt, für verschiedene Betriebspunkte der HT-PEFC simuliert und verglichen.



# 3. Grundlagen und Literatur

## 3.1. Motivation

Die GDL stellt eine wesentliche Komponente der Brennstoffzelle dar [4]. Die Bipolarplatten (vergleiche Abbildung 2.1) werden unter Anpressdruck verschraubt, um die Gas-Dichtigkeit der Brennstoffzelle zu gewährleisten. Wenn die GDL in die Brennstoffzelle integriert ist, verändert sich somit ihre Struktur, da die Kanal-Steg-Geometrie der Bipolarplatte die GDL verformt. Mit einem Modell des Kanal-Steg-Übergangs wurden Synchrotron-Aufnahmen von komprimierten Vlies-Materialien in [5] durchgeführt. In Abbildung 3.1 ist eins der dort erzeugten Tomogramme mit komprimierter GDL zu sehen.



Reprinted from Publication Journal of Power Sources, 253, C. Tötze, G. Gaiselmann, M. Osenberg, J. Bohner, T. Arlt, H. Markötter, A. Hilger, F. Wieder, A. Kupsch, B.R. Müller, M.P. Hentschel, J. Banhart, V. Schmidt, W. Lehnert, I. Manke, Three-dimensional study of compressed gas diffusion layers using synchrotron X-ray imaging, 123-131, ©2014, with permission from Elsevier.

Abbildung 3.1.: Querschnitt des Tomogramms der Probe einer GDL-Struktur aus komprimiertem Vlies-Material [5], die sich in einer Kanal-Steg-Geometrie unter Anpressdruck befindet.

Sie besteht aus zufällig angeordneten Kohlenstofffasern einer Dicke von  $9\text{ }\mu\text{m}$  bis  $10\text{ }\mu\text{m}$  [6]. Man erkennt deutlich, dass durch den Anpressdruck im Stegbereich - an den Rändern links und rechts - die Fasern in den Kanal - in der Mitte - hineinragen. Die Beschaffenheit der GDL trägt wesentlich zur Gasverteilung an der Elektrode der Brennstoffzelle bei.

Typische in der Brennstoffzelle verwendete Materialstärken der GDL liegen bei  $\sim 200\text{ }\mu\text{m}$  [7]. Die Porosität (Hohlraumanteil) des in Abbildung 3.1 gezeigten Vlies-Materials liegt unkomprimiert bei 78% und wird durch die Kompression in der Brennstoffzelle reduziert [5]. Die Gasströmung durch die GDL erfolgt demnach durch ein Material makroskopischer Ausdehnung, in dem die Hohlräume den überwiegenden Anteil ausmachen. Die Größe, Form und Anordnung der Hohlräume oder auch Poren, die dabei entstehen, sind von entscheidender Bedeutung für die Gasströmung. Innerhalb der Struktur ist es allerdings schwierig festzulegen, wie eine

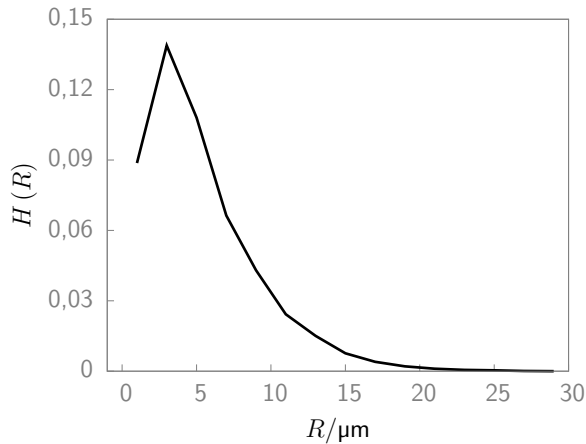
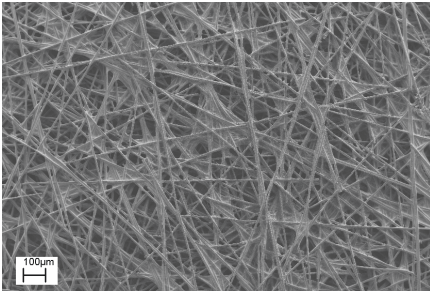


Abbildung 3.2.: Relative Häufigkeitsverteilung von  $R$  ausgedrückt durch die sphärische Kontaktverteilung  $H(R)$ . Sie gibt an, wie wahrscheinlich es ist, von einem zufällig ausgewählten Punkt im Porenraum, im kürzesten Abstand  $R$  zum Feststoff zu gelangen. Zu sehen ist die Verteilung der unkomprimierten Realdaten.

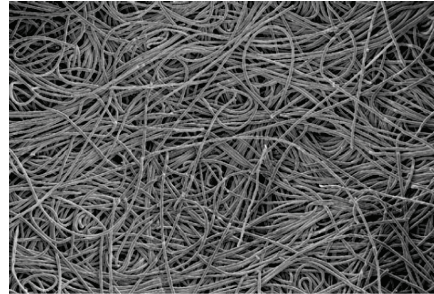
typische Pore aussieht: Die Hohlräume sind in zufälliger Weise von Fasern begrenzt, was zu unterschiedlichsten geometrischen Konstruktionen für mögliche Porendefinitionen führt. Ein Ansatz Poren festzulegen, ist in [8] beschrieben. In dieser Arbeit wird für die Definition der Porenradienverteilung die sphärische Kontaktverteilung  $H(R)$  verwendet, die geometrisch nicht eindeutig dem Porenradius entspricht, aber analog verwendet werden kann. Sie gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der ein zufälliger Punkt im Porenraum den nächstgelegenen Feststoff erreicht (vergleiche Kapitel 5.3.2). Als mittlerer Porenradius wird der Mittelwert der Porenradienverteilung festgelegt. Die Porenradienverteilung für das in Abbildung 3.1 gezeigte Material ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Typische Porenradien in der untersuchten Struktur liegen demnach zwischen  $3 \mu\text{m}$  und  $20 \mu\text{m}$  bei einem mittleren Porenradius von  $5,2 \mu\text{m}$ . Um die Gasströmung in diesen und ähnlichen GDL-Materialien zu simulieren, besteht ein klassischer Ansatz darin, analytische Gleichungen, die den Stofftransport beschreiben, mit effektiven Strukturparametern anzupassen. Im *mean transport pore-model* (MTPM) [9] wird als poröse Struktur ein Kapillarmodell angenommen. Experimentell werden die Strukturparameter ( $r$ ,  $\langle r^2 \rangle$ ,  $\Psi$ ) des Stofftransports im Kapillarmodell bestimmt. Dabei ist  $r$  der Kapillarenradius und  $\Psi$  der Quotient aus Porosität und Tortuosität, sodass insgesamt drei Strukturparameter vorgegeben werden müssen. Die Tortuosität  $\tau$  ist ein Maß dafür, wie sehr eine Strömung durch eine Struktur von seinem direkten Weg abgebracht wird, gibt also die Gewundenheit der Struktur an (näheres in Kapitel 3.6). Im MTPM werden die konvektiven und diffusiven Anteile der Strömung als additiv angenommen. Im konvektiven Teil, der durch eine Erweiterung der Darcy-Gleichung [9] beschrieben wird, ist die effektive Permeabilität  $\kappa$  ebenfalls eine Kennzahl, die von den drei Strukturparametern abhängig ist. Das Modell wurde erfolgreich in SOFC-Brennstoffzellen (*solid oxide fuel cell*) angewandt [10]. Ein ähnlicher Ansatz, der ebenfalls auf effektive Transportparameter beruht ist das *dusty-gas-model* in [9].

Die Vorteile der effektiven Transportmodelle sind, dass drei experimentelle Kenngrößen ausreichen, um das Modell aufzustellen. Außerdem sind die entstandenen Gleichungen analytisch und können mit wenig Rechenaufwand gelöst werden. Der Bezug zu experimentellen Parametern des Modells ist eine Besonderheit, die, wenn experimentelle Ergebnisse nicht greifbar oder



Reproduced by the permission of the Electrochemical Society in ECS Transactions 50, J.P. Brinkmann, D. Froning, U. Reimer, V. Schmidt, W. Lehnert, D. Stolten, 3D modeling of one and two component gas flow in fibrous microstructures in fuel cells by using the lattice-Boltzmann method, 207-219, No. 2.

(a) Toray-060-Papier [14]



Reprinted from Publication Computational Materials Science, 59, G. Gaiselmann, R. Thiedmann, I. Manke, W. Lehnert, V. Schmidt, Stochastic 3D modeling of fiber-based materials, 75-86, ©2012, with permission from Elsevier.

(b) Freudenberg-Vlies [11]

Abbildung 3.3.: REM-Bilder der beiden in dieser Arbeit untersuchten GDL-Geometrien.

ungenau sind, Nachteile mit sich bringt. Da die innere Struktur in diesem Modell in effektiven Parametern abgebildet wird, sind zudem keine lokalen Informationen der Strömung innerhalb der Struktur vorhanden, sondern das poröse Medium geht als Einheit in das Modell ein.

Der Ansatz in dieser Arbeit berücksichtigt den Einfluss der mikroskopischen GDL-Struktur auf die Gasströmung. Die LB-Gleichung wird auf jedem Punkt eines dreidimensionalen kubischen Gitters, das mit festgelegtem Abstand in die GDL-Geometrie gelegt wird, gelöst. So sind durch die Simulation die Geschwindigkeit und die Dichte beziehungsweise der Druck im gesamten GDL-Gebiet bekannt. Die Einflüsse der Fasern, die in den Gaskanal ragen, können ebenso analysiert werden wie die statistischen Schwankungen, die das Material konstruktionsbedingt mit sich bringt. Der Rechenaufwand ist im Gegensatz zum MTPM wesentlich höher, was eine parallele Implementierung erfordert. Im Gegensatz zum MTPM können die effektiven Parameter des Modells wie die Tortuosität und die Permeabilität direkt aus der Gasströmung berechnet werden. Demnach ist diese Methode gänzlich von experimentellen Stofftransport-Informationen des Materials unabhängig und kann verwendet werden, um die gemessenen effektiven Parameter mit den modellierten zu vergleichen. Detaillierte Kenntnisse über die Struktur des Materials hingegen sind notwendig.

## 3.2. Geometrie-Modelle

In dieser Arbeit wird neben der Strömung in den Realdaten auch Simulationen in einem Geometrie-Modell durchgeführt. Die modellierte Struktur ist ein statistisches Modell, das auf der Grundlage von Realstrukturen wie in Abbildung 3.1 basiert. Es werden zwei Fasermaterialien betrachtet. Das Toray-Papier [6, 11] (im Folgenden "Papier") besteht aus geraden Fasern (vergleiche Abbildung 3.3a), während das Vlies-Material der Firma Freudenberg FCCT SE & Co. KG (im Folgenden "Vlies") sich aus gekrümmten Fasern zusammensetzt [12, 13] (vergleiche Abbildung 3.1).

Strömungssimulationen in Papier-Materialien wurden für Realdaten zum Beispiel in [15] ebenfalls mit der LB-Methode untersucht. In [16] wurde mit LB-Methoden gezeigt, wie mit der



Stapelung von Fasern eine gute Näherung eines realen Papiers erreicht werden kann. In [17] wurden LB-Simulationen in einem stochastischen Modell [6, 13] des Toray-060-Papiers durchgeführt und zudem einige Binder-Modelle miteinander verglichen. Diese Geometrie mit einem der Binder-Modelle wird in dieser Arbeit ebenfalls verwendet. Sie dient allerdings hauptsächlich als Referenz für die Analyse des Vlies-Materials, dessen Struktur-Untersuchung eine der zentralen Themen darstellt.

Das Vlies-Modell wurde in [6, 11, 18] der Grundidee des Papier-Modells folgend entwickelt. Das Papier-Modell und die ersten Versionen des Vlies-Modells [6, 11] sind Schichtenmodelle, in denen die dreidimensionale Struktur aus übereinandergestapelten zweidimensionalen Schichten besteht. Sie basieren auf 2D-REM-Bildern wie in Abbildung 3.3b. In der hier verwendeten Version werden mit stochastischen Methoden Polygonzügen direkt in 3D generiert, deren Verlauf auf 3D-Synchrotron-Aufnahmen, wie in Abbildung 3.1 gezeigt, beruht [18]. Anschließend werden die Polygonzüge, anlehnd an die Dicke der Fasern, in 3D dilatiert. Die Anzahl der erzeugten Fasern basiert auf der Porosität des ursprünglichen Materials. Es entsteht eine modellierte stochastische Struktur des Vlieses. Zur Validierung des Modells wird die erzeugte dreidimensionale Struktur, wie auch in den Schichtenmodellen, mit realen 3D-Synchrotron Daten des Materials verglichen und optisch sowie stochastisch validiert.

Der Vorteil eines stochastischen Modells ist die Möglichkeit, viele stochastisch äquivalente Geometrien schnell im Computer zu generieren. So können beliebig große Stichproben des Materials produziert werden, um zum Beispiel stochastische Effekte zu untersuchen. Für die Erzeugung von Realdaten wären dementsprechend viele Messungen erforderlich und mit einem hohen Aufwand verbunden. In der Arbeit werden sowohl die Realdaten als auch die modellierte Version des Vlies-Materials analysiert und verglichen. Dabei folgert aus den stochastischen Vorgaben nicht automatisch eine Übereinstimmung der Materialien in Bezug auf die Strömungseigenschaften. Die genaue Faserlegung oder die lokale Porosität können zum Beispiel diese Eigenschaften beeinflussen (vergleiche Kapitel 5.3.2). Neben der bloßen Analyse der Materialien wird außerdem untersucht, ob es möglich ist, das stochastische Material so zu formen, dass es, unter Beibehaltung der fixen vorgegebenen Eigenschaften, den Realdaten aus strömungsmechanischer Sicht entspricht. Die Randbedingungen für die Strömungssimulationen in dieser Arbeit orientieren sich immer an den Betriebsbedingungen der HT-PEFC, in der diese Materialien eine wichtige Komponente darstellen.

## 3.3. Strömungssimulation in der HT-PEFC

In folgenden Kapitel werden die Grundprinzipien der HT-PEFC vorgestellt. Im Kapitel 3.3.1 ist die Funktionsweise der HT-PEFC erläutert. Anschließend werden in Kapitel 3.3.3 die strömungsmechanischen Aspekte der HT-PEFC diskutiert. Schließlich werden in Kapitel 3.3.2 die Betriebsbedingungen der HT-PEFC mit den strömungsmechanischen Randbedingungen in Verbindung gebracht.

### 3.3.1. Grundprinzip und Anwendung

Die HT-PEFC ist eine Weiterentwicklung der weit verbreiteten klassischen PEFC (*polymer electrolyte fuel cell*) [19, 20]. Typische Temperaturen in der HT-PEFC sind 160 °C [21], während die PEFC bei circa 80 °C betrieben wird [22]. Der Haupt-Nachteil der HT-PEFC im Vergleich zur PEFC sind die geringeren Stromdichten und somit im Allgemeinen eine geringere Leistung. Eine typische U-J-Kennlinie der HT-PEFC ist in Abbildung 3.4 zu sehen.

Generell sind unterschiedliche Betriebsbereiche denkbar. Mit zunehmender Stromdichte  $J$

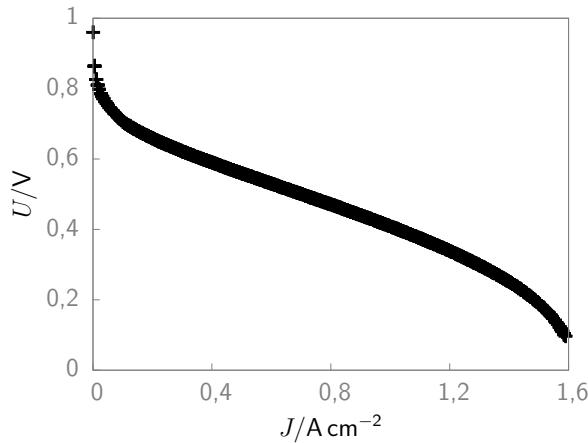


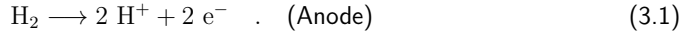
Abbildung 3.4.: U-J-Kennlinie einer HT-PEFC. Gemessen am IEK-3 des Forschungszentrums Jülich.

verringert sich der Wirkungsgrad. Die maximale Leistung wird bei etwa  $0,8 \text{ A cm}^{-1}$  erreicht. Dabei ist zu beachten, dass die Stromdichte in der HT-PEFC abhängig ist von vielerlei Faktoren [23], wie zum Beispiel Alterung, Kontaktwiderstand der GDL und so weiter. Eine genauere Analyse der Kennlinie ist zum Beispiel in [23] erklärt. Für diese Arbeit wird zunächst vereinfacht eine konstante mittlere Stromdichte von  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  angenommen. Dies ist ein typischer Wert wie die Kennlinie und [24, 25] bestätigen. Die Vorteile der HT-PEFC gegenüber der PEFC sind die höhere CO-Verträglichkeit und das einfachere Temperatur-Management [23, 25].

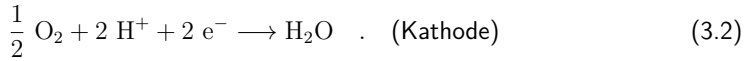
Die CO-Verträglichkeit macht es möglich, die HT-PEFC mit aus Reformat gewonnenem Wasserstoff, der bis zu 1 % mit CO verunreinigt ist, zu betreiben [23]. Da die HT-PEFC so in Verbindung mit einem Reformier mit herkömmlichen Kraftstoffen betrieben werden kann, gehören zum möglichen Anwendungsbereich zum Beispiel die Bordstromversorgung (*auxiliary power unit*, APU) in LKWs oder Flugzeugen [26]. Das Temperatur-Management ist der PEFC insofern überlegen, dass die Temperaturdifferenz zur Umgebungs-Temperatur wesentlich höher ist. Dies erleichtert die Abfuhr der Abwärme und ermöglicht effizientere Kühlmethoden [21]. Dazu kommt, dass Wasser bei der Betriebstemperatur der HT-PEFC gasförmig vorliegt. Ein weit verbreitetes Problem der PEFC, dass flüssiges Wasser Gaskanäle blockiert, tritt daher nicht auf und keine besonderen Konzepte zum Wasser-Management sind nötig [27].

Das Schema einer HT-PEFC ist in Abbildung 2.1 dargestellt. An der Anode strömt Wasserstoff oder Reformat in die Kanäle und an der Kathode Sauerstoff oder Luft. Die Membran trennt Anode und Kathode. Die Bipolarplatte besteht abwechselnd aus Kanälen für den Gastransport und Stegen für den Elektronentransport und besteht aus Graphit-Komposit oder Metall [25]. Von den Kanälen in der Bipolarplatte wird das Gas über die Gasdiffusionsschicht (GDL) an die Elektrode geleitet sowohl unter den Kanal als auch unter die Stege, sodass es im Idealfall gleichmäßig an der Elektrode ankommt. Der mechanische Anpressdruck der Bipolarplatten führt, wie in Kapitel 3.1 erläutert, zu einer Komprimierung der GDL. Neben der Gasverteilung liefert die GDL mechanische Unterstützung [28] für die Membran, die Elektroden und die teilweise vorhandene Mikroporöse Schicht (*microporous layer*, MPL). Letztere sorgt für eine gleichmäßige Feinverteilung des Gases und verhindert das Austreten von Phosphorsäure aus der Membran [23]. Die Elektrode besteht aus auf Kohlenstoffruß geträgertem Platin beziehungsweise

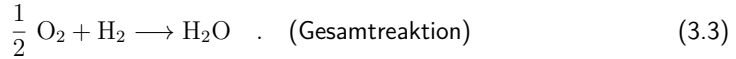
Platin-Legierungen [24]. Die beiden Elektroden der HT-PEFC sind durch die Polymer-Elektrolyt-Membran getrennt, die diesem Brennstoffzellen-Typ ihren Namen gibt. Diese Membran ist mit Phosphorsäure getränkt, die sie durchlässig macht für Protonen [29]. An der Anode wird der Wasserstoff in Anwesenheit des Katalysators Platin in Elektronen und Protonen gespalten. Die Wasserstoffoxidsationsreaktion (*hydrogen oxydation reaction*, HOR) ist [30]



Die  $\text{H}^+$ -Ionen gelangen über die Membran zur Kathode. Durch die somit entstandene Potentialdifferenz fließt ein Strom über den Kohlenstoff beziehungsweise die GDL auf die Anodenseite. Dieser Strom wird mit der Reaktion an der Kathodenseite aufrecht erhalten [30] und führt zur Sauerstoffreduktionsreaktion (*oxygen reduction reaction*, ORR)



Die Gesamtreaktion ist somit



Das entstandene Wasser liegt bei der Betriebstemperatur der HT-PEFC gasförmig vor und entweicht im großen Teil direkt an der Kathode über den Gaskanal. Zudem gehen Teile des Wassers mit der Phosphorsäure in die Membran, was dazu führt, dass außerdem ein Bruchteil des Wassers an der Anodenseite ausgetragen wird [31]. Die Bruttoreaktion in Gleichung (3.3) suggeriert das sehr einfache Prinzip der Brennstoffzelle. Wie aber bereits in der kurzen Diskussion zu erkennen, laufen im realen Betrieb der HT-PEFC eine Vielzahl elektrochemischer und physikalischer Prozesse ab. Diese Arbeit widmet sich der Modellierung und Simulation der Gasströmung in der GDL. Im folgenden Abschnitt wird aus den Betriebsbedingungen der HT-PEFC die Randbedingung für die LB-Simulation hergeleitet.

### 3.3.2. Betriebsbedingungen

Als eine typische Stromdichte im Betrieb der HT-PEFC wurde im letzten Kapitel  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  bestimmt. Generell steigt die Stromdichte  $J$ , wenn mehr Gas an der Elektrode über die chemischen Reaktionen in Gleichung (3.1) und Gleichung (3.2) umgesetzt wird. Das Faraday'sche Gesetz [30, S. 72] beschreibt diesen Zusammenhang wie folgt

$$J = \frac{I}{A} = \frac{Q}{t A} = \frac{z F \dot{n}}{A} \quad . \quad (3.4)$$

Dabei ist  $A$  die Querschnittsfläche, auf der die Reaktion stattfindet,  $Q$  die Ladungsmenge pro Zeit  $t$ ,  $I$  die elektrische Stromstärke,  $F$  die Faradaykonstante,  $\dot{n}$  der Molenstrom und  $z$  die Anzahl der ausgetauschten Elektronen in der Reaktion. Über den Massenstrom  $\dot{m}$

$$\dot{m} = \dot{n} M = \varrho v_{\text{ref}} A \quad , \quad (3.5)$$

mit der molaren Masse  $M$  und der Massendichte  $\varrho$ , lässt sich die makroskopische Referenzgeschwindigkeit des Gases  $v_{\text{ref}}$  an der Elektrode mit Gleichung (3.4) abschätzen.

Diese Geschwindigkeit wird als Randbedingung für den LB-Algorithmus verwendet und entspricht der mittleren Eingangsgeschwindigkeit  $v_0$  für die erste Schicht in der Geometrie. Das Vorgehen dabei ist somit invers zu dem, was in der realen Brennstoffzelle passiert. Während dort ein Betriebspunkt zu einer bestimmten Geschwindigkeit an der Elektrode führt, wird

im LB-Algorithmus eine Geschwindigkeit angenommen, die einem bestimmten Betriebspunkt entspricht. Es wird vereinfacht davon ausgegangen, dass das gesamte betrachtete Gas an der Elektrode umgesetzt wird, weil die Geschwindigkeit gerade über den Umsatz motiviert ist. Der jeweils betrachtete Fall ist daher ein plausibles Beispiel für den realen Brennstoffzellenbetrieb. Die absolute Dichte des Gases  $\rho$  ist die zweite Eingangsgröße des Stoffes im LB-Algorithmus. Je nach Druck und Temperatur wird sie aus Tabellenwerken für Stoffgrößen entnommen. Die Anzahl der übertragenen Elektronen pro Reaktion ist aus den Bruttogleichungen für Anode (Gleichung (3.1)) und Kathode (Gleichung (3.2)) ersichtlich. Die folgende Tabelle 3.1 fasst die Eingangs- und Stoffgrößen für typische Betriebsbedingungen der Anode und Kathode für die HT-PEFC zusammen.

Tabelle 3.1.: Übersicht der Eingangsparameter für die Gasströmung an Anode und Kathode der HT-PEFC. Als Betriebstemperatur wird 160 °C angenommen, wenn nicht anders angegeben. Die Stoffwerte sind aus [32, 33].

Elektrode	Gas	$z$	$\rho$	$M$	$v_{\text{ref}}$	$\eta$
			kg m <sup>3</sup>	kg mol <sup>-1</sup>	m s <sup>-1</sup>	μPa s
Anode	H <sub>2</sub>	2	0,089	0,002	0,000 59	8,9 (25°C)
Kathode	O <sub>2</sub>	4	0,909	0,032	0,000 46	27,0

In Kapitel 5, in dem die Anodenseite diskutiert wird, sind die Eingangsrandbedingungen stets so gewählt, dass die Einlass-Geschwindigkeit und die Auslass-Dichte vorgegeben werden. Dies entspricht damit der ersten Zeile der Tabelle 3.1. Als Randbedingungen für die Kathode in Kapitel 6 geht die Konzentrationsdifferenz entlang der Geometrie in die Simulation ein. Hier werden mit Sauerstoff und Wasserdampf außerdem zwei Komponenten betrachtet. Auch wenn die Eingangsgeschwindigkeit nicht wie in Kapitel 5 direkt in die Simulation eingeht, dient die zweite Zeile in Tabelle 3.1 als wichtige Voraussetzung für die Abschätzung der Partialdruckdifferenz von Sauerstoff. Dieser Zusammenhang und die daraus folgenden Randbedingungen für die zweite Komponente (Wasserdampf) sind in Kapitel 6.1 erklärt. Im Algorithmus sind die beschriebenen Randbedingungen über den Zou-He-Algorithmus implementiert (vergleiche Kapitel 3.5.1).

### 3.3.3. Strömungssimulation - Grundlagen

Um die verschiedenen Bereiche der Brennstoffzelle in einen strömungsmechanischen Kontext zu bringen, sollen zunächst einige wichtige Punkte der Strömungsmechanik zusammengefasst werden. In einer Gasströmung gibt es zwei grundsätzliche Ursachen für Teilchenbewegungen: die Diffusion und die Konvektion.

Die Diffusion wird hervorgerufen durch die thermische Bewegung aufgrund der inneren Energie des Gases. Bei Gasen kann die Fernwechselwirkung durch Van-der-Waals-Kräfte oft vernachlässigt werden. Die Moleküle bewegen sich mit dieser Näherung solange geradlinig durch den Raum, bis sie mit anderen Molekülen kollidieren. Dies geschieht im Mittel nach der mittleren freien Weglänge  $l_f$ . Für zwei und mehr Gase können die thermischen Bewegungen dann zu einem Stofftransport führen. Im stochastischen Mittel finden in Gebieten höherer Konzentration mehr Stöße in Richtung eines Gebiets mit geringerer Gaskonzentration statt. Es stellt sich über die Diffusion ein Massenstrom ein, der charakteristisch ist für die Stoffgrößen der beteiligten Gase wie Viskosität, Molmasse etc.. In dieser Arbeit wird im Speziellen die Diffusion für den LB-Algorithmus untersucht und in Kapitel 6.1 beschrieben. Die Klassifizierung der Ergebnisse von Strömungen wird in Kapitel 3.6 diskutiert.

Die konvektive Strömung wird hervorgerufen durch Temperatur- und Druckdifferenzen. Im Gegensatz zur Diffusion handelt es sich hierbei um eine Strömung, die das gesamte Fluid in einem bestimmten Bereich erfasst, also eine makroskopische Geschwindigkeit auferlegt. Jedes Molekül, das in diesem Bereich enthalten ist, erfährt sie und wird mitgerissen in Richtung der Strömung. Thermische Bewegungen sind weiterhin in konvektiven Prozessen vorhanden, überlagern demnach die Konvektion. Effekte der Selbstdiffusion [34], ob in simplen Geometrien oder porösen Medien [35], werden nicht behandelt.

Um Strömungen anhand der Eingangsgrößen zu klassifizieren beziehungsweise zu vergleichen, werden üblicherweise Strömungs-Kennzahlen eingeführt. Das Verhalten eines strömenden Gases hängt dabei nicht allein von seinen makroskopischen Zustandsgrößen ab. Um ein Strömungsproblem zu beschreiben, sind die Ausmaße der durchströmten beziehungsweise umströmten Geometrie zu berücksichtigen. Die Knudsenzahl [36]

$$Kn = \frac{l_f}{L_{ch}} \quad (3.6)$$

ist eine dimensionslose Kennzahl, die das Verhältnis der mittleren freien Weglänge der Moleküle  $l_f$  zu einer charakteristischen Länge der durchströmten Geometrie  $L_{ch}$  beschreibt. Die wesentlichen Eigenschaften einer Strömung werden einerseits durch die Kollision mit anderen Molekülen, andererseits durch den Einfluss des Randes bestimmt. Je kleiner die mittlere freie Weglänge im Verhältnis zur charakteristischen Länge ist, desto mehr ist das Verhalten des Fluids durch seine inneren Kollisionen bestimmt. Es ist üblich, für die Klassifizierung der Strömungsbereiche anhand der Knudsenzahl folgende Einteilung in Tabelle 3.2 vorzunehmen.

Tabelle 3.2.: Strömungsbereiche klassifiziert nach der Knudsenzahl aus [37].

Bezeichnung	Bereich
Kontinuumsströmung	$0 < Kn < 10^{-2}$
Gleitströmung	$10^{-2} < Kn < 10^{-1}$
nahezu freie Molekülströmung	$10^{-1} < Kn < 10$
freie Molekülströmung	$10 < Kn < \infty$

Der Anwendungsbereich der *computational fluid dynamics* (CFD) [36] und auch der LB-Simulation, wie sie hier verwendet wird, ist auf den Kontinuumsbereich beschränkt. Eine kurze Abschätzung zeigt, dass diese Bedingungen bis zur Größenordnung der GDL in der HT-PEFC erfüllt ist. Wasserstoff hat die größte mittlere freie Weglänge der Gase in der HT-PEFC bei  $T = 160^\circ\text{C}$  mit  $l_f \sim 100\text{ nm}$ . Mit der mittleren Porengröße  $\bar{R} = 5\text{ }\mu\text{m}$  (vergleiche Kapitel 5.3.2) erhält man die Knudsenzahl  $Kn \sim 0,02$ . Alle betrachteten Strömungen liegen demnach im Bereich der Kontinuumsströmung.

Zwei weitere dimensionslose Kennzahlen sind in dieser Arbeit von Bedeutung, die Machzahl und die Reynoldszahl. Die Machzahl  $Ma$  [36, S. 33] beschreibt den Kompressibilitätseinfluss des strömenden Gases wie folgt:

$$Ma = \frac{v_{\text{ref}}}{a} \quad (3.7)$$

Sie setzt eine makroskopische Referenz-Strömungsgeschwindigkeit des Gases  $v_{\text{ref}}$  in Relation zur Schallgeschwindigkeit  $a$ . Da die Schallgeschwindigkeit für jedes Gas dieselbe Größenordnung hat wie die mittlere Molekülgeschwindigkeit, beschreibt sie, wie sehr sich die von außen erzwungene Störung auf die ungestörte Bewegung auswirkt, die das Gas komprimiert und Druckunterschiede

erzwingt. Der LB-Algorithmus setzt inkompressible Strömung  $Ma \ll 1$  voraus, wie in Kapitel 3.4.3 zu sehen. Vergleicht man typische Strömungsgeschwindigkeiten in der Brennstoffzelle in Tabelle 3.1, wird deutlich, dass diese Bedingung bereits für Sauerstoff als das hier betrachtete Gas mit der niedrigsten Schallgeschwindigkeit von  $a = 393,7 \text{ m s}^{-1}$  [32] erfüllt ist. Die Reynoldszahl setzt Trägheits- und Zähigkeitskräfte in Beziehung zueinander und ist wie folgt definiert [36, S. 33] :

$$Re = \frac{\rho L_{\text{ch}} v_{\text{ref}}}{\eta} = \frac{L_{\text{ch}} v_{\text{ref}}}{\nu} . \quad (3.8)$$

Hier ist  $\eta$  die dynamische Viskosität des Gases. Hohe Reynoldszahlen bedeuten, dass das Gas anfälliger ist, bei Störungen turbulente Strömungen (Wirbel) zu entwickeln [38]. Die Zähigkeit des Gases ist dann im Vergleich zur makroskopischen Strömung nicht hoch genug, dass von der Strömung mitgerissene Moleküle auf einer Strömungslinie bleiben. Der Wert des Übergangs von laminarer (wirbelfreier) zu turbulenter Strömung ist abhängig vom betrachteten Problem. Der Richtwert  $Re = 2300$  gemäß [38] liegt viele Größenordnungen über den Reynoldszahlen für die in dieser Arbeit betrachteten Strömungen. Für Sauerstoff ergibt sich mit der Viskosität<sup>1</sup>  $\nu = 100 \mu\text{m s}^{-1}$ , der Länge  $L_{\text{ch}} = 5 \mu\text{m}$  und der Geschwindigkeit  $0,00046 \text{ m s}^{-1}$  aus Tabelle 3.1 eine Reynoldszahl von  $Re \sim 10^{-5}$ . Wie dieses Beispiel sind auch alle anderen Strömungen in dieser Arbeit ausschließlich im laminaren Bereich. Die Reynoldszahl dient in der Strömungsmechanik als Ähnlichkeitsparameter für Strömungen. Obwohl die absoluten Eingangsparameter zweier Strömungen sehr verschieden sein können, gilt gleiches Strömungsverhalten, wenn die Reynoldszahl identisch ist [39]. In der Praxis wird dies oft verwendet, um reale Strömungen auf ein leichter zugängliches Modell zu übertragen. In dieser Arbeit wird diese Ähnlichkeit genutzt, um numerische Vorteile bei der Simulation von Strömungsproblemen zu erzielen.

### 3.3.4. Strömungssimulation - Brennstoffzelle

Die allgemeine theoretische Beschreibung der Strömungsmechanik muss auf konkrete Problemstellungen angepasst werden. Dazu dienen Näherungslösungen, deren Annahmen die Geltungsbereiche der hergeleiteten Simulationsalgorithmen einschränken. Da in der Brennstoffzelle Geometrien mit den Größenordnungen Nanometer bis Millimeter vorkommen, ist es nicht möglich, die Gasströmung aus algorithmischer Sicht einheitlich zu behandeln, weil je nach betrachteter Skala unterschiedliche physikalische Prozesse im Vordergrund stehen. Eine Übersicht der verschiedenen Größenordnungen und Lösungsansätze für die Bereiche der HT-PEFC ist im Folgenden gegeben.

- **Bipolarplatten/Stacks**  $\geq \text{mm}$ : Entlang des Druckgradienten in den Kanälen der Bipolarplatten findet ein konvektiver Stofftransport statt aufgrund einer Druckdifferenz zwischen Ein- und Auslass der Bipolarplatten [40,41]. In diesem Bereich sowie in Systemen wie Brennstoffzellen-Stacks wird oft die CFD angewandt, die makroskopische Differentialgleichungen wie zum Beispiel die Navier-Stokes-Gleichungen mit numerischen Methoden lösen (PEFC: [42], HT-PEFC: [43,44]). Die Navier-Stokes-Gleichungen sind Kontinuums-Erweiterungen der klassischen Impulserhaltung, die, ergänzt durch den Massen- und Energieerhaltungssatz, die physikalischen Grundprinzipien erfüllen [36].
- **GDL**  $\approx \mu\text{m}$ : Sobald Gas an der Elektrode umgesetzt wird, entsteht eine Konzentrationsdifferenz und gleichzeitig eine Druckdifferenz zwischen Gaskanal der Bipolarplatte und der Elektrode. Entlang dieser Konzentrationsdifferenz strömt das Gas daher durch die GDL

<sup>1</sup>Die kinetische Viskosität hängt über  $\nu = \eta/\rho$  mit der dynamischen Viskosität zusammen.

zur Elektrode. Es kommt zu diffusivem und konvektivem Stofftransport. Eine genauere Diskussion dazu folgt in Kapitel 6. Typische GDL-Strukturen sind poröse Medien mit Poren im  $\mu\text{m}$ -Bereich. Wie in Kapitel 3.1 erklärt, geht in klassischen Ansätzen wie dem MTPM häufig nur die Struktur der GDL als experimenteller Parameter in die effektive Transportgleichung zur Beschreibung des Stofftransport in porösen Medien ein. Mit dem LB-Ansatz soll die Gasströmung in der GDL als Beispiel einer porösen Struktur das zentrale Untersuchungsobjekt dieser Arbeit sein.

- **Elektrode/Membran** nm: Für die Simulation von Protonentransport und Gastransport in Membranen im generellen Kontext der Brennstoffzelle sei auf die Molekulardynamik (siehe beispielsweise [45]) verwiesen.

Es ist zu beachten, dass die auf in dieser Aufzählung hingewiesenen Methoden prinzipiell nicht auf diese Bereiche beschränkt sind, sondern lediglich häufig in diesem Kontext verwendet werden. Ein anderer Ansatz, das Verhalten von Brennstoffzellen zu simulieren, der nicht auf reinen Transportprozessen beruht, ist die Analytische Modellierung. In diesem Ansatz werden analytische, elektrochemische Beziehungen für die Brennstoffzelle gelöst. Die Anwendung zur Beschreibung der Elektrode ist ebenso möglich wie die Simulation von Stacks. Eine ausführliche Beschreibung dieses Ansatzes ist in [46] zu finden.

## 3.4. Lattice-Boltzmann-Methode: Vom Gas zu Lattice-BGK

Die Lattice-Boltzmann-Methode in ihrer ursprünglichen Form wurde Ende der 1980er Jahre auf der Grundlage der Lattice-Gas-Automaten [47] entwickelt [48, 49]. Mit diesem Ansatz konnten die Probleme ihres Vorgängers [50, 51] überwunden werden. Die wesentlichen dieser Probleme waren das Auftreten statistischer Artefakte, keine Galilei-Invarianz des Modells und Schwierigkeiten bei der Simulation in dreidimensionalen Gittern.

Es wird zunächst in Kapitel 3.4.1 eine Herleitung der Boltzmann-Gleichung vorgestellt. In Kapitel 3.4.2 wird eine analytische Näherung der Boltzmann-Gleichung diskutiert, die im anschließenden Kapitel 3.4.3 auf die grundlegende Gleichung des hier verwendeten Algorithmus, die Lattice-BGK-Gleichung, führt. Einige Eigenschaften dieser Gleichung werden schließlich in Kapitel 3.4.4 erläutert. Die Abschnitte 3.4.1, 3.4.2 und 3.4.3 fassen, wenn nicht anders verwiesen wird, die für diese Arbeit wichtigen Aspekte aus [37] zusammen. Die Notation dieser Arbeit ist ebenfalls an [37] angelehnt.

### 3.4.1. Herleitung der Boltzmann-Gleichung

Die Boltzmann-Gleichung ist eine allgemeine Beschreibung von gaskinetischen Prozessen. Eine ausführliche Herleitung ist in [52] zu finden. Als wesentliche Näherungen bei der Herleitung der Boltzmann-Gleichung werden starre, elastische Kugeln angenommen. Als Wechselwirkungen werden nur die Kollision der Teilchen und äußere Felder berücksichtigt, die intermolekularen Kräfte werden vernachlässigt. Ferner soll der Moleküldurchmesser wesentlich kleiner sein als die mittlere freie Weglänge der Moleküle und es werden nur binäre Kollisionen betrachtet.

In einem abgeschlossenen System im Kräftegleichgewicht ist ein Gas durch alle makroskopischen Zustandsgrößen wie z.B. Dichte und Temperatur eindeutig bestimmt. Eine mikroskopische Momentaufnahme hingegen ordnet jedem Molekül im System einen Ort und eine Geschwindigkeit zu. Obwohl das System seine makroskopischen Größen nicht ändert, liefert so eine

Momentaufnahme zu einer neuen Zeit eine völlig andere Molekülkonfiguration. Dies zeigt, dass es zur Modellierung dieses makroskopischen Systems nicht zweckmäßig ist, einzelne Moleküle zu betrachten.

Um das System eindeutig zu charakterisieren, muss die gesuchte Funktion sowohl den dreidimensionalen Raum, als auch das dreidimensionale Geschwindigkeitsfeld abbilden. Der Raum, der aus diesen sechs Koordinaten aufgespannt wird, wird im Folgenden Phasenraum genannt. Bedingungen an die Funktion ist einerseits die Stetigkeit, also eine ausreichende Anzahl an Molekülen, und außerdem, dass sich die makroskopischen Größen des Systems eindeutig aus ihr ergeben. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$f(\vec{r}, \vec{\xi}) = \frac{dN}{dV d\vec{\xi}} \quad (3.9)$$

beschreibt die Teilchendichte, also die Teilchenzahl  $N$  pro Volumen  $V$  und Molekülgeschwindigkeit  $\vec{\xi}$  [37]. Anders interpretiert gibt sie die Wahrscheinlichkeit an, ein Teilchen in einem bestimmten, infinitesimalen Phasenraumvolumen um den Ortspunkt  $\vec{r}$  und der Geschwindigkeit  $\vec{\xi}$  zu finden. Unabhängig von der physikalischen Interpretation muss  $f(\vec{r}, \vec{\xi})$  die geforderten Bedingungen erfüllen. Es wird vorausgesetzt, dass die Teilchenzahl im betrachteten Phasenraumvolumen groß genug ist, um die Stetigkeit der Funktion zu gewährleisten. Gleichung (3.9) ist nicht beschränkt auf ein bestimmtes (reales) System, sondern beschreibt prinzipiell ein gestörtes oder ungestörtes System von Teilchen, deren Variablen beliebige makroskopische Parameter beschreiben, solange sie dies eindeutig tun. Die Verknüpfung zur realen Welt entsteht dadurch, dass die zugewiesenen makroskopischen Größen den in der Natur realisierten Größen entsprechen. Der denkbar einfachste Zustand eines realen Systems ist der Gleichgewichtszustand [37, S. 62 ff.]. Unter Annahme einer kugelsymmetrischen Geschwindigkeitsverteilung und der Isotropie des Raumes ergibt sich eine Exponentialfunktion mit unbestimmten Koeffizienten, die diesen Zustand beschreibt. Die makroskopischen Größen legen diese Koeffizienten eindeutig fest, sodass die an die Wahrscheinlichkeitsverteilung gestellte Bedingung erfüllt wird. Aus der Transformation in Kugelkoordinaten ergibt sich schließlich die Maxwell-Verteilung:

$$f^{\text{eq}}(\vec{c}^2) = \frac{n}{(2\pi RT)^{3/2}} \exp\left(-\frac{\vec{c}^2}{2RT}\right) \quad (3.10)$$

In der Gleichung ist  $T$  die Temperatur,  $R$  die spezifische Gaskonstante,  $n$  die Teilchendichte und  $\vec{c}$  die thermische Geschwindigkeit der Moleküle. Die Maxwell-Verteilung in Form der Gleichung (3.10) beschreibt die ungestörte Wahrscheinlichkeitsverteilung für die thermischen Geschwindigkeiten  $\vec{c}$  eines Gases. Auch für ein mit einer globalen Geschwindigkeit  $\vec{v}$  bewegtes System wird die thermische Geschwindigkeit durch Gleichung 3.10 beschrieben. Dabei ist der thermischen Geschwindigkeit  $\vec{c}$  eine zusätzliche makroskopische Geschwindigkeit  $\vec{v}$  global hinzugefügt (vergleiche Gleichung (3.11)). In Abbildung 3.5 ist die Maxwell-Verteilung für Sauerstoff und Wasserstoff für die Betriebsbedingungen einer HT-PEFC dargestellt. Für Wasserstoff ist es wahrscheinlicher, Moleküle mit höheren Geschwindigkeiten zu finden. Für ein System mit einer makroskopischen Geschwindigkeit aus Tabelle 3.1 würden sich die Kurven insgesamt aber kaum merklich verschieben, da sie nur einen sehr geringen Anteil an der Gesamtgeschwindigkeit der Moleküle hat, also kleinen Machzahlen entspricht, wie in Kapitel 3.3.3 berechnet.

In strömungsdynamischen Problemen wird das thermodynamische Gleichgewicht durch äußere Einflüsse wie zum Beispiel Druck- oder Temperaturdifferenzen gestört. Auf mikroskopischer Ebene wird das Ungleichgewicht der Störung in andere Bereiche der Geometrie *transportiert* und durch *Kollisionen* auf andere Moleküle übertragen. Bleiben diese Einflüsse bestehen, kann das System im relevanten Anwendungsbereich zu einem stationärem Zustand relaxieren, in



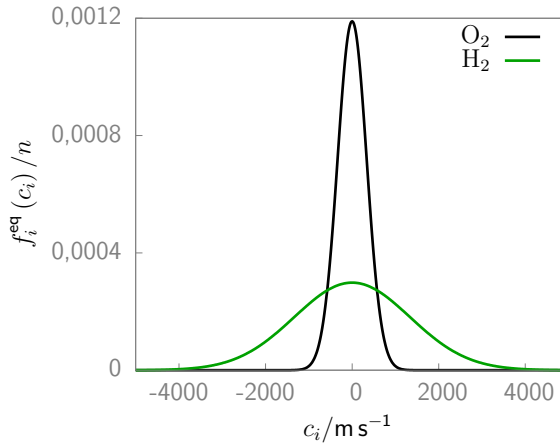


Abbildung 3.5.: Eindimensionale Maxwell-Verteilung für Sauerstoff und Wasserstoff für die Betriebstemperatur der HT-PEFC von 160 °C. Aufgetragen ist die auf die Teilchendichte normierte Wahrscheinlichkeit  $f_i^{\text{eq}}(c_i)/n$  über die thermische Molekülgeschwindigkeit in eine Raumrichtung  $c_i$ .

dem alle makroskopischen Größen über die Zeit konstant sind. Während des Relaxationsprozesses kann, wenn die Störung des Systems ausreichend klein ist, an jedem Punkt lokal eine Maxwell-Verteilung angenommen werden, die mit der lokalen Geschwindigkeit jeweils Abbildung 3.5 entspricht, aber im Simulationsgebiet nicht einheitlich ist. Die Annahme der lokalen Gleichgewichte ist die Grundlage für die BGK-Näherung, die in Kapitel 3.4.2 als Basis für den späteren Algorithmus diskutiert wird.

Die Gesamtgeschwindigkeit  $\vec{\xi}$  eines einzelnen Moleküls in einem strömenden Gas setzt sich zusammen aus der thermischen Geschwindigkeit  $\vec{c}$  und der makroskopischen Geschwindigkeit der Störung  $\vec{v}$ :

$$\vec{\xi} = \vec{c} + \vec{v} \quad . \quad (3.11)$$

Um die Geschwindigkeit  $\vec{v}$ , seine Massendichte  $\rho$  und alle weiteren makroskopischen Größen zu beschreiben, muss eine Beziehung hergestellt werden zu der mesoskopischen Verteilungsfunktion in Gleichung (3.10). Die Integrale über die verschiedenen Potenzen der Wahrscheinlichkeitsverteilung werden Momente genannt. Sie können als makroskopische Größen interpretiert werden. Für die Gleichgewichtsverteilung  $f^{\text{eq}}$  sind die Momente  $\mu$  eines Gases in Ruhe oder mit konstanter globaler Geschwindigkeit in  $n$ -ter Ordnung definiert durch [37, S. 74]

$$\mu = \int c_i^n \cdot f^{\text{eq}}(c^2) d\vec{c} \quad . \quad (3.12)$$

Eine Störung erzeugt Nichtgleichgewichtsverteilungen, die in andere Bereiche des Systems transportiert werden und durch Kollisionen in (lokale) Gleichgewichtsverteilungen übergehen. Die Momente mit geradzahigen Potenzen von  $c$  sind die Stoßinvarianten, solche, die im Kollisionsprozess erhalten bleiben. Da sie für den LB-Algorithmus weniger wichtig sind, werden die Integrale mit ungeraden Potenzen von  $c$  hier nicht weiter diskutiert. Im Folgenden ist eine Auswahl der erhaltenen Momente geradzahiger Potenzen der Geschwindigkeit für die

Gleichgewichtsverteilung dargestellt. Hierbei ist  $m$  die Molekülmasse:

$$\varrho = \int f^{\text{eq}}(c^2) d\vec{c} \quad \text{Dichte,} \quad (3.13)$$

$$v_i \varrho = m v_i \int f^{\text{eq}}(c^2) d\vec{c} \quad \text{Massenstrom,} \quad (3.14)$$

$$\varrho \cdot \frac{3}{2} R T = \frac{m}{2} \int c^2 f^{\text{eq}}(c^2) d\vec{c} \quad \text{Energie pro Volumen,} \quad (3.15)$$

$$p = \varrho R T = \frac{m}{3} \int c^2 f^{\text{eq}}(c^2) d\vec{c} \quad \text{Druck.} \quad (3.16)$$

Für eine ausführlichere Diskussion der Momente, insbesondere solche ungerader Ordnung, die Nichtgleichgewichtsvorgänge beschreiben, siehe [37, S. 74 ff.]. Die Boltzmann-Gleichung, auf deren Grundlage der Algorithmus der Strömungssimulation erfolgt, resultiert aus der Teilchenzahlerhaltung. Betrachtet man Transportprozesse in einem kleinen, endlichen Phasenraumvolumen, wird die Teilchenzahl bei Transportprozessen nur dann variieren, wenn in diesem Phasenraumvolumen Dichteschwankungen aufgrund von Kollisionen vorherrschen. Die Gleichung [37, S. 92]

$$(\Delta N_t + \Delta N_r + \Delta N_\xi)_{\text{Transport}} = (\Delta N_G - \Delta N_V)_{\text{Kollision}} \quad (3.17)$$

verdeutlicht dies. Die zeitliche ( $\Delta N_t$ ) und räumliche ( $\Delta N_r$ ) Schwankung sowie die Dichteschwankung aufgrund externer Kräfte ( $\Delta N_\xi$ ) sind genau dann ungleich null, wenn im Phasenraumvolumen Schwankungen der Teilchenzahl aufgrund von Kollisionen entstehen. Die Dichteschwankungen aufgrund von Kollisionen setzen sich zusammen aus dem Gewinn  $\Delta N_G$  und dem Verlust  $\Delta N_V$  an Teilchen in Folge von Kollisionen. Gemäß der Definition der Wahrscheinlichkeitsverteilung in Gleichung (3.9) und deren Taylor-Entwicklung (hier beispielsweise für  $\Delta N_t$ ) [37, S. 92]

$$f(\vec{\xi}, \vec{r}, t + \Delta t) = f(\vec{\xi}, \vec{r}, t) + \frac{\partial f(\vec{\xi}, \vec{r}, t)}{\partial t} \Delta t + \dots \quad (3.18)$$

wird diese Gleichung überführt in die Boltzmann-Gleichung [37, S. 95]

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \sum_{i=1}^3 \xi_i \frac{\partial f}{\partial x_i} + \sum_{i=1}^3 \frac{F_i}{m} \frac{\partial f}{\partial \xi_i} = \int \int_{A_c} (f' f'_1 - f f_1) \vec{g} dA_c d\vec{\xi}_1 \quad (3.19)$$

Die Größen einer externen Kraft  $F_i$  auf eine Masse  $m$  bilden mit der Molekülgeschwindigkeits-Ableitung der Wahrscheinlichkeitsverteilung  $f$  den Transportterm der externen Kräfte. Die zeitlichen und örtlichen Ableitungen komplettieren den Transportteil auf der linken Seite. Das Integral über den Wirkungsquerschnitt  $A_c$  und die Molekülgeschwindigkeiten im gesamten Phasenraum  $\vec{\xi}_1$  beschreibt die Kollision von Molekülen im Kontrollvolumen mit den Molekülen außerhalb des Phasenraumvolumens  $f f_1$  (Verlustanteil) und solchen, die aufgrund von Kollisionen  $f' f'_1$  in das Kontrollvolumen eindringen (Gewinnanteil). Die Relativgeschwindigkeit der Kollisionspartner wird  $\vec{g}$  genannt.

Das  $H$ -Theorem macht eine Aussage über das durch Boltzmann eingeführte Funktional  $H$ . Es besagt, dass in energetisch isolierten Prozessen  $H$  im Laufe der Zeit abnimmt [53]. Mit der Boltzmann-Gleichung wird so die mikroskopische Beschreibung mit makroskopischen Größen wie der Entropie verbunden [54, S. 10]. Dies beinhaltet den zweiten Hauptsatz der Thermodynamik, was in der Boltzmann-Gleichung einer Entwicklung zu wahrscheinlicheren Zuständen entspricht [53]. Die Maxwell-Verteilung ist die Lösung der Boltzmann-Gleichung, für die die

Entropieänderung gleich null ist [53] und der sich jedes abgeschlossene System annähert. Eine Übersicht der historisch strittigen Punkten, die aus der Boltzmann-Gleichung folgen, ist in [53, 55, 56] zu finden.

Die Boltzmann-Gleichung beschreibt im Allgemeinen gasdynamische Prozesse im Geltungsbe-  
reich, der theoretisch alle in Tabelle 3.2 beschriebenen Skalen abdeckt. Die Struktur dieser  
Integro-Differentialgleichung lässt keine allgemeine analytische Lösung zu, sodass alle bekann-  
ten Lösungen auf Näherungen und numerischen Verfahren beruhen. Je nach numerischem  
Verfahren wird der Gültigkeitsbereich eingeschränkt. Im Folgenden wird die vielfach verwendete  
Bhatnagar-Gross-Krook-Näherung (BGK-Näherung) erklärt, die die Grundlage für das numeri-  
sche Verfahren in dieser Dissertation liefert. Ein alternativer Ansatz, die Boltzmann-Gleichung  
mit numerischen Methoden zu lösen, sind Monte-Carlo-Methoden. In [57] ist eine Übersicht  
über diese Methoden gegeben.

### 3.4.2. BGK-Näherung

Die erste Formulierung der BGK-Näherung, die auf P. L. Bhatnagar, E. P. Gross und M.  
Krook beruht, geht in das Jahr 1954 zurück [58] und wurde später in die Standardliteratur zu  
Boltzmann-Gleichung [37, 50, 54] übernommen. Die BGK-Gleichung stellt eine Näherung der  
Boltzmann-Gleichung (3.19) dar, die den Kollisions-Term vereinfacht. Diese Näherung liefert  
die Grundlage für die anschließende Diskretisierung [59]. Das Kollisionsintegral wird ersetzt  
durch einen Relaxationsterm mit der Kollisionsfrequenz  $\omega$

$$\int_{\vec{\xi}_1} \int_{A_c} (f' f'_1 - f f_1) \vec{g} dA_c d\vec{\xi}_1 \longrightarrow \omega(f^{\text{eq}} - f) \quad . \quad (3.20)$$

Diese Annahme beruht auf dem  $H$ -Theorem, welches besagt, dass sich jedes gestörte phy-  
sikalische System irgendwann einem Gleichgewichtszustand annähert, in dem es durch die  
Maxwell-Gleichgewichtsverteilung  $f^{\text{eq}}$  beschrieben werden kann. Dadurch resultiert eine einfa-  
chere Struktur von Gleichung (3.19):

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \sum_{i=1}^3 \xi_i \frac{\partial f}{\partial x_i} + \sum_{i=1}^3 \frac{F_i}{m} \frac{\partial f}{\partial \xi_i} = \omega(f^{\text{eq}} - f) \quad . \quad (3.21)$$

Diese ermöglicht eine Diskretisierung, aus der die Lattice-BGK-Gleichung folgt, wie im folgenden  
Abschnitt erläutert. Durch die Kollisionen relaxiert die Nichtgleichgewichtsverteilung  $f$  in  
Gleichung (3.21) hin zur Gleichgewichtsverteilung  $f^{\text{eq}}$ . Dabei bleiben, wie in Abschnitt 3.4.1  
erklärt, bestimmte makroskopische Größen wie Geschwindigkeit und Dichte beziehungsweise  
Druck erhalten. Dies gilt für den Kollisionsprozess jedes Punktes im betrachteten Gebiet und  
ist lokal beschränkt. Die Maxwell-Verteilung  $f^{\text{eq}}$  ist ebenfalls für sehr kleine Gebiete konstant  
und somit eine lokale Maxwell-Verteilung. In der diskretisierten Version ist sie auf den einzelnen  
Punkten des Simulationsgitters definiert. Damit die Forderung des lokalen Gleichgewichts erfüllt  
ist, muss die Kollisionszeit

$$\tau = 1/\omega \quad (3.22)$$

wesentlich kleiner sein als eine Referenzzeit  $T_{\text{ref}}$  der makroskopischen Strömung. Diese Definition  
[37] ist eine alternative Formulierung der Knudsenzahl in Gleichung (3.6):

$$Kn_{\text{BGK}} = \frac{l_f}{L_{\text{ch}}} \sim \frac{\delta x}{L_{\text{ch}}} \sim \frac{\tau}{T_{\text{ref}}} \ll 1 \quad . \quad (3.23)$$

Sie besagt, dass die makroskopische Abmessung wesentlich größer ist als die mittlere freie Weglänge  $l_f$  beziehungsweise ihrem Äquivalent in der diskretisierten Geometrie, dem Gitterabstand  $dx$ . Wie in Kapitel 3.3.3 erläutert, entspricht diese Bedingung einer inkompressiblen Strömung und stellt eine wesentliche Einschränkung des BGK-Algorithmus dar. Je nachdem, welche Randbedingungen an die simulierte Strömung anliegen, erreicht das System unterschiedliche Endzustände im Falle der Konvergenz. Liegen an jedem Ort lokale Gleichgewichte vor, die sich mit der Zeit nicht mehr ändern ( $\partial f^{eq}/\partial t = 0$ ), lässt sich aus Gleichung (3.21) sofort folgern, dass an einem (konstanten) Ort die Nichtgleichgewichtsverteilung gegen die lokale Maxwell-Verteilung tendiert. Wenn das System sich unter Einfluss äußerer Kräfte (zum Beispiel Druckrandbedingungen) befindet, erreicht es so einen stationären Zustand mit lokalen, zeitinvarianten maxwellischen Gleichgewichten an jedem Ort. In einem gestörten System, welches sich dann selbst überlassen wird, strebt das System gegen ein globales thermodynamisches Gleichgewicht.

### 3.4.3. Lattice-BGK-Methode

Die Lattice-BGK-Methode in der diskretisierten Version wurde zum Beispiel von [60] Anfang der 1990er Jahre eingeführt. Die Herleitung, wie hier dargestellt, orientiert sich an [37]. Das Ziel dieses Kapitels ist es, einen kurzen Überblick über das in der Literatur sehr verbreitete Standardverfahren der Lattice-Boltzmann-Methode zu geben. Die Anwendungsbereiche von auf dem BGK-Algorithmus basierenden Methoden sind vielfältig und reichen von der Geohydrologie [61] bis in die Medizin [62].

Um den angestrebten Algorithmus zu erhalten, muss Gleichung (3.21) im gesamten Phasenraum diskretisiert werden. Ein diskretisierter dreidimensionaler Phasenraum ist in Abbildung 3.6 gezeigt. Verschiedene Realisierungen eines raumerfüllenden Gitters sind möglich. In Abbildung 3.6 ist die dreidimensionale Diskretisierung für einen Gitterpunkt und damit die 19 möglichen Bewegungsrichtungen zu benachbarten Gitterpunkten zu sehen (Notation:  $D3Q19$ ). Wie

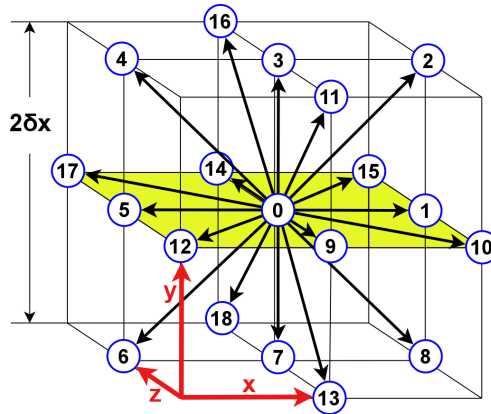


Abbildung 3.6.: Darstellung des diskretisierten Phasenraums im  $D3Q19$  Gitter.

in [63] beschrieben, sind andere Diskretisierungen möglich und können je nach Anwendungsfall aus numerischer Sicht die sinnvollere Wahl sein. Die diskreten Geschwindigkeiten sorgen ebenso für eine Diskretisierung der Gleichgewichtsverteilung (Notation  $f(\xi_i) \rightarrow f_i$  mit  $i = 1 \dots Q$ ). Auf den Verbindungen zwischen den Gitterpunkten bewegen sich die Moleküle frei bis sie

an den Knotenpunkten kollidieren. Der Abstand zweier Gitterpunkte  $\delta x$  legt demnach die Ortsdiskretisierung fest. Um die Beträge der Molekülgeschwindigkeiten dem Gitter anzupassen, wird folgende Beziehung festgelegt

$$\delta x = \delta t \xi_0 \quad . \quad (3.24)$$

Dadurch wird der Einheitsbetrag der Molekülgeschwindigkeit  $\xi_0$  so diskretisiert, dass sich die Moleküle für die diskretisierte Zeit  $\delta t$  auf den Knotenpunkten befinden.

Eine wesentliche Einschränkung des Algorithmus in der hier verwendeten Form betrifft die Diskretisierung der Gleichgewichtsverteilung in Gleichung (3.19). Bei der Taylorreihen-Entwicklung, die diesen Prozess begleitet, werden kleine Machzahlen (vergleiche Gleichung (3.7)) angenommen:

$$Ma = \frac{|\vec{v}|}{c_s} \ll 1 \quad . \quad (3.25)$$

Die isotherme Schallgeschwindigkeit  $c_s$  liegt in der Größenordnung der Molekülgeschwindigkeit  $\xi$  (vergleiche Gleichung (3.31)). Demnach besagt Gleichung (3.25), dass die makroskopische Geschwindigkeit der Strömung  $\vec{v}$ , die durch eine Störung hervorgerufen wurde, nur einen Bruchteil der gesamten Molekülgeschwindigkeit ausmacht (vergleiche Gleichung (3.11)).

Die Diskretisierung der Gleichgewichtsverteilung (3.19) folgt durch eine Entwicklung in erster Ordnung und führt zur folgenden diskretisierten Gleichgewichtsverteilung<sup>2</sup> [64]:

$$f_i^{\text{eq}}(\vec{x}, t) = \varrho \cdot t_p \cdot \left[ 1 + \frac{v^\alpha \xi_{\alpha,i}}{c_s^2} + \frac{v^\alpha v^\beta}{2c_s^2} \left( \frac{\xi_{i,\alpha} \xi_{i,\beta}}{c_s^2} - \delta_{\alpha\beta} \right) \right] \quad . \quad (3.26)$$

Damit die Wahrscheinlichkeitsverteilung auch im diskretisierten Fall auf die makroskopischen Größen führt, muss gelten [37, S. 180]:

$$\varrho = \sum_i f_i^{\text{eq}} \quad \text{Dichte,} \quad (3.27)$$

$$\varrho v_\alpha = \sum_i \xi_{i,\alpha} f_i^{\text{eq}} \quad \text{Massenstrom,} \quad (3.28)$$

$$\varrho v_\alpha v_\beta + p \delta_{\alpha\beta} = \sum_i \xi_{i,\alpha} \xi_{i,\beta} f_i^{\text{eq}} \quad \text{Impuls-/Spannungstensor.} \quad (3.29)$$

Aus diesen Betrachtungen ergibt sich außerdem das ideale Gasgesetz für die Dichte-Druck-Beziehung:

$$p = \sum_i f_i^{\text{eq}} c_s^2 = \varrho c_s^2 = \varrho R T \quad . \quad (3.30)$$

Die Energie pro Volumen aus Gleichung (3.15) wird im BGK-Algorithmus nicht betrachtet, da durch die Voraussetzung kleiner Machzahlen ein näherungsweise isothermes Verhalten im Simulationsgebiet vorliegt [37]. Prinzipiell ist es möglich, die Temperatur mit zu berücksichtigen, wie zum Beispiel in [65] beschrieben. In [54, S. 234] wird auf eine Schwachstelle des LB-Algorithmus in Bezug auf die Interpretation der Temperatur hingewiesen.

Aus der Voraussetzung, die Momente zu erfüllen, wird aus der diskretisierten Gleichgewichtsverteilung in Gleichung (3.26) der Gewichtungsfaktor  $t_p$ , abhängig von Dimension und Diskretisierung, für die verschiedenen Geschwindigkeiten hergeleitet [37, 50, 54]. Im hier betrachteten D3Q19-Gitter wird so die molekulare Einheitsgeschwindigkeit auf

$$\xi_0 = \sqrt{3} c_s \quad (3.31)$$

<sup>2</sup>Notation: Über doppelte Indizes wird summiert -  $v^\alpha \xi_\alpha = \vec{v} \cdot \vec{\xi}$  für  $\alpha = 1 \dots D$ . Es gilt außerdem  $\vec{r} = \vec{x}$ .

festgelegt. Dabei wird mit  $c_s = \sqrt{RT}$  (vergleiche A.2) die isotherme Schallgeschwindigkeit [37, S. 173] definiert. Aus Abbildung 3.6 ist zu erkennen, dass der Abstand zum Nachbarpunkt 0,1 oder  $\sqrt{2}$  sein kann. Das Quadrat der Molekülgeschwindigkeiten sind daher Vielfache von  $\xi_0^2$  beziehungsweise null. Die Gewichtungsfaktoren für die drei möglichen diskreten Geschwindigkeiten werden gemäß [64] wie folgt festgelegt:  $t_0 = 1/3$ ,  $t_1 = 1/18$  und  $t_2 = 1/36$ . Es ist wichtig anzumerken, dass im Algorithmus die Geschwindigkeiten unterschiedlich behandelt werden. Nach der Diskretisierung der molekularen Geschwindigkeit  $\vec{\xi} \rightarrow \vec{\xi}_i$  wird die jeweilige Wahrscheinlichkeit für die diskreten Geschwindigkeiten bestimmt. Die Strömungsgeschwindigkeit  $\vec{v}$  hingegen kann, da die Wahrscheinlichkeiten der Molekülgeschwindigkeit und nicht allein die diskretisierte Molekülgeschwindigkeit betrachtet wird, kontinuierliche Werte annehmen, wie in Gleichung (3.28) dargestellt. Mit der diskretisierten Ableitung ergibt sich schließlich die (kräftefreie) Lattice-BGK-Gleichung, die dem angewendeten Algorithmus zu Grunde liegt [37, 50, 54]:

$$f_i(\vec{r} + \vec{\xi}_i \cdot \delta t, t + \delta t) = f_i(\vec{r}, t) + \omega \cdot \delta t \cdot [f_i^{\text{eq}}(\vec{r}, t) - f_i(\vec{r}, t)] \quad (3.32)$$

Auf der rechten Seite des Algorithmus, dem Kollisionsschritt, befindet sich der Kollisionsoperator der BGK-Approximation  $\Omega = \omega \cdot \delta t \cdot [f_i^{\text{eq}}(\vec{r}, t) - f_i(\vec{r}, t)]$ . Der Algorithmus erlaubt es, die rechte und die linke Seite der Gleichung getrennt zu implementieren. Nach der Berechnung der Kollision an jedem Gitterpunkt, in die die Molekülbewegungen von  $Q$  Gitterpunkten einfließen, erfolgt der Transportschritt, bei dem beide Seiten gleich gesetzt werden. Die einzelnen Schritte der Implementierung des Algorithmus sind in Tabelle 3.3 aufgeführt.

Tabelle 3.3.: Schema des LB-Algorithmus:

### Präprozess

Ein- und Ausströmung an den Rändern

↓ ↓ ↓

### Algorithmus

1. Transport des Nichtgleichgewichts
2. Kollision (Massen- und Impulserhaltung)
  - A Berechne makroskopische Größen (+ Randbedingungen)
  - B Berechne Gleichgewichtsverteilung
  - C Relaxation

↓ ↓ ↓

### Postprozess

Makroskopische Größen und Kennzahlen in Simulationsgebiet ausgeben

Zusammenfassend ist der BGK-Algorithmus aus Gleichung (3.32) ein Wechselspiel aus Kollisions- und Transportschritt: Nichtgleichgewichte liegen an allen Gitterpunkten des Simulationsgebietes vor und relaxieren, im Kollisionsschritt, instantan ( $Kn \ll 1$ ) zu lokalen Gleichgewichten. Die Geschwindigkeit und die Dichte sind vor und nach der Kollision gleich. Im Transportschritt verschieben sich alle lokalen Gleichgewichte gemäß ihrer makroskopischen Eigenschaften und an allen Gitterpunkten entstehen neue Nichtgleichgewichte. Dieser Prozess setzt sich fort, bis sich die verschobenen Nichtgleichgewichte (annähernd) nicht mehr von den lokalen Gleichgewichten unterscheiden. Als Ergebnis der Simulation erhält man, wenn ein stationärer Zustand vorliegt, das Druck- und das Geschwindigkeits-Profil an jedem Punkt der Simulations-Geometrie.

### 3.4.4. Eigenschaften der BGK-Gleichung

Nachdem der Algorithmus für die BGK-Gleichung motiviert und aus der Boltzmann-Gleichung hergeleitet wurde, sollen noch einige Aspekte diskutiert werden, die die physikalischen Eigenschaften des verwendeten Algorithmus beschreiben. Diese sind die Massen- und Energieerhaltung, der Kollisionsparameter  $\omega$  und Grenzbereiche der Lattice-BGK-Gleichung. Um die Massen- und Energieerhaltung zu diskutieren, werden kurz die wesentlichen Aspekte aus [37] zusammengefasst, die diese Punkte betreffen.

In Abschnitt 3.4.1 wurde diskutiert, wie aus den Verteilungsfunktionen Momente, die mit makroskopischen Größen zusammenhängen, generiert werden. In ähnlicher Weise kann aus der Boltzmann-Gleichung eine Momentengleichung [37, S. 104] hergeleitet werden, die einer verallgemeinerten Boltzmann-Gleichung entspricht. Durch verschiedene Näherungslösungen dieses unterbestimmten Gleichungssystems lassen sich mit den kollisionsinvarianten Momenten Erhaltungsgleichungen für die Masse, den Impuls und die Energie ableiten [37, S. 107 f.]. Diese enthalten unbestimmte Informationen über die übrigen Momente, die nicht kollisionsinvariant sind (Transportterme) [37, S. 109]. Die Chapman-Enskog-Entwicklung, die auf den Arbeiten [66] und [67] basiert, ist eine gängige Methode, um die Gleichung für eine kleine Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht (kleine Knudsenzahlen) zu lösen. Dies gilt sowohl für die analytische Boltzmann-Gleichung [68] als auch für die diskretisierte BGK-Version [37, S. 132 f.]. Mit der erhaltenen Nichtgleichgewichtsverteilung lassen sich die unbekannten Transportterme bestimmen und es lässt sich zeigen, dass das bisher unterbestimmte Gleichungssystem für inkompressible Strömung dem System aus Navier-Stokes-Gleichungen [36, S. 92 ff.] entspricht und so die physikalisch grundlegende Voraussetzung der Massen- und Energieerhaltung gewährleistet. Die Transportterme werden dabei in Beziehung gesetzt [37, S. 139 ff.] mit bekannten Kontinuumsannahmen und so werden weitere Beziehungen der physikalischen Systemgrößen, die die Eingangsgrößen des Algorithmus mit makroskopischen Stoffgrößen in Beziehung setzen, erhalten. Daraus ergibt sich auch die Beziehung

$$\omega = \frac{c_s^2}{\nu + \delta t c_s^2 / 2} , \quad (3.33)$$

die die Kollisionsfrequenz  $\omega$  mit der kinematischen Viskosität  $\nu$  in Beziehung setzt. Für eine Betrachtung der Galilei-Invarianz der Methode sei auf [69] und [70] verwiesen. Eine Beschreibung, wie die verschiedenen physikalischen Größen in Gittereinheiten transformiert und damit auf dem Simulationsgitter beschrieben werden beziehungsweise in den Algorithmus eingehen, ist im Anhang A zu finden. Die Festlegung der Kollisionsfrequenz, die in Abschnitt 3.4.2 eingeführt wurde, ist eine wesentliche Schwäche des BGK-Algorithmus [71]. Sie entsteht dadurch, dass die Relaxationszeiten aller thermodynamischen Größen im gasdynamischen System gleich gesetzt werden. Aus diesem Grund wird der BGK-Algorithmus auch *single-relaxation-time*-Algorithmus (SRT) genannt. Eine Alternative dazu ist das *multi-relaxation-time*-Verfahren (MRT), welches in Kapitel 3.5.2 vorgestellt wird. Diese Arbeit beinhaltet einen intensiven Vergleich dieser beiden Algorithmen. Dabei wird sich zeigen, dass der Kollisionsparameter einen wesentlichen Einfluss auf die Gültigkeit der erhaltenen Ergebnisse hat. Dies wird deutlich, wenn man aus numerischen Gründen den Kollisionsparameter  $\omega$  und nicht die Viskosität im Algorithmus vorgibt. Dieser numerische Trick ist möglich [54, S. 118], wenn man gleichzeitig die Geschwindigkeit des Algorithmus so verändert, dass die Reynoldszahl des strömenden Systems konstant bleibt (vergleiche Kapitel 3.3.1). Aus Gleichung (3.8) und Gleichung (3.33) folgt bei gleicher Geometrie für die neue Geschwindigkeit

$$v_{\text{neu}} = \frac{v_{\text{alt}}}{\nu_{\text{alt}}} \cdot \nu_{\text{neu}} = \frac{v_{\text{alt}}}{\nu_{\text{alt}}} \cdot \left( \frac{c_s^2}{\omega} - \frac{\delta t c_s^2}{2} \right) . \quad (3.34)$$

Die Formulierung des BGK-Algorithmus aus der Boltzmann-Gleichung in Kapitel 3.4.3 führt zu wesentlichen Einschränkungen im Gültigkeitsbereich der erhaltenen Gleichung. Aus den Einschränkungen auf lokale Gleichgewichte ergibt sich die Bedingung kleiner Knudsenzahlen. Die Diskretisierung der Gleichgewichtsverteilung in erster Ordnung führt zur Bedingung kleiner Machzahlen. Wie in Kapitel 3.3.3 gezeigt, sind diese Bedingungen für die hier betrachteten Betriebsfälle und Geometrien erfüllt. Der Grenzbereich liegt in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge der Moleküle. Dies ist in etwa die Größenordnung, in der die Strukturen in der MPL der HT-PEFC liegen. Auch wenn der Algorithmus dort prinzipiell funktioniert, ist eine erneute Validierung insbesondere der Randbereiche, die dann einen stärkeren Einfluss haben, nötig. Wie in Kapitel 3.3.3 erläutert, liegt die hier betrachtete Strömung ausschließlich im laminaren Bereich. Für eine Analyse der LB-Methode für turbulente Reynoldszahlen sei auf [72] verwiesen.

## 3.5. Lattice-Boltzmann-Methode: Erweiterungen

Die Lattice-BGK-Gleichung (3.32) ist eine Grundlage für viele Erweiterungen. In diesem Kapitel werden zunächst die verwendeten Randbedingungen in Abschnitt 3.5.1 diskutiert. In Abschnitt 3.5.2 wird dann eine Generalisierung des SRT-Algorithmus, der MRT-Algorithmus, vorgestellt und der letzte Abschnitt 3.5.3 dieses Kapitels handelt über Mehrphasen- und Mehrkomponenten-Simulation.

### 3.5.1. Randbedingungen

Als Randbedingungen werden im Allgemeinen die Annahmen bezeichnet, die die Eigenschaften des Algorithmus am Ende der Simulations-Geometrie betreffen. Dabei gibt es zwei wesentliche Unterschiede. Entweder fließt das Gas am Rand in die Geometrie hinein beziehungsweise aus der Geometrie heraus oder es trifft auf eine Wand und wird in die Ebene reflektiert. In diesem Abschnitt sollen kurz die verwendeten Algorithmen für die jeweilige Situation vorgestellt werden. Für die Wand-Randbedingung wird in der Arbeit eine no-slip (Haftbedingung) [73] verwendet, die eine Form der Dirichlet-Randbedingung darstellt. Im LB-Algorithmus ist sie unter dem Namen Bounce-Back-Randbedingung bekannt. Der Algorithmus wird angewendet auf die 19 diskretisierten Verteilungsfunktionen, die durch den Transportschritt aus dem Simulationsgebiet herausführen und eine Wand erreichen. Der Wert der Verteilungsfunktion wird umgespeichert und gemäß Abbildung 3.6 an die gegenüberliegende Verteilungsfunktion zurückgegeben. Daraus gilt für die Geschwindigkeit des Gitterpunktes vor und nach der Reflexion

$$\vec{v}_{\text{vor}} = -\vec{v}_{\text{nach}} \quad . \quad (3.35)$$

Die Haftbedingung, dass die Geschwindigkeit am Rand verschwindet, ist somit erfüllt [74]. In dieser Arbeit ist die Wand jeweils so gewählt, dass ein Diskretisierungsfehler der ersten Ordnung im Ort folgt. Wie in [74] beschrieben, ist die Lage der Wand relativ zu den Gitterpunkten entscheidend, um die Genauigkeit dieser Anwendung bis zur zweiten Ordnung zu verbessern. Andere Vorschläge zur Steigerung der Genauigkeit dieser Randbedingung sind in [75, 76] zu finden. Gekrümmte Geometrien werden in [77] und in [78] behandelt. Genauigkeiten in der Wahl der Randbedingung haben Einbußen in der Rechenzeit zur Folge. Da in dieser Arbeit hauptsächlich poröse Geometrien untersucht werden, deren Fasern jeweils als Wandpunkte behandelt werden, wird daher hier auf komplexere Randbedingungen verzichtet.



Um dem Simulationsgebiet physikalische Einflüsse von außen vorzuschreiben, müssen die makroskopischen Größen direkt vorgegeben werden. Eine reine Betrachtung der Verteilungsfunktionen reicht daher nicht aus. Ansätze dafür wurden in [79], wo Gleichgewichtsverteilungen auf dem Rand berechnen werden, und in ein Extrapolation-Schema in [80] veröffentlicht. Der Ansatz von Q. Zou und X. He [81,82], der dies ebenso verwirklicht, soll im Folgenden kurz skizziert werden. In [83] wurde dieser Ansatz für den hier verwendeten  $D3Q19$  Algorithmus diskutiert, der für diese Arbeit übernommen wurde. Im Wesentlichen besteht der Algorithmus aus drei Schritten:

1. Als makroskopische Größe wird entweder der Druck oder die Geschwindigkeit, die am Rand herrscht, vorgegeben. Geht man beispielsweise davon aus, dass der Druck vorgegeben wird, wird mit Gleichung (3.27) und Gleichung (3.28) und den bekannten Verteilungsfunktionen die Geschwindigkeit in Haupt-Fließrichtung berechnet. Da nun der Druck und die Geschwindigkeit bekannt sind, können alle Gleichgewichtsverteilungen berechnet werden.
2. Unbekannte Nichtgleichgewichtsverteilungs-Funktionen mit Komponente in Fließrichtung werden aus den bekannten Gleichgewichtsverteilungen berechnet, mit dem Ansatz, dass der reflektierte Teil der Nichtgleichgewichtsverteilung den Bounce-Back-Bedingungen genügt.
3. Unter Benutzung von Gleichung (3.28) werden Korrekturen vertikal zur Haupt-Fließrichtung mit berücksichtigt und die verbleibenden unbekannten Nichtgleichgewichtsverteilungen, die keine Komponente in Haupt-Fließrichtung haben, aus den makroskopischen Geschwindigkeiten in diesen Richtungen erhalten.

Durch die Berechnung der Gleichgewichtsverteilung in zweiter Ordnung in der Geschwindigkeit werden demnach die unbekannten Nichtgleichgewichtsverteilungen bestimmt. Im Gegensatz zur Bounce-Back-Bedingung, wo die Nichtgleichgewichts-Bedingungen lediglich umgespeichert werden, ist dieser Algorithmus wesentlich rechenintensiver. Er wird in dieser Arbeit verwendet, um die makroskopischen Randbedingungen Dichte und Geschwindigkeit, die in Kapitel 3.3.3 für den LB-Algorithmus dargestellt und in Kapitel 3.3.2 für die angenommenen Randbedingungen berechnet wurden, vorzugeben.

#### 3.5.2. MRT/SRT

Bei der BGK-Näherung in Kapitel 3.4.2 wurde der Relaxationsparameter  $\omega$  eingeführt (SRT-Algorithmus). Alle thermodynamischen Größen des Systems relaxieren mit derselben Geschwindigkeit gegen das lokale Gleichgewicht. Dies ist die wesentliche Schwachstelle des Algorithmus, die zu einer Viskositäts-Abhängigkeit der Randbedingungen führt [74]. Darüber hinaus ist die numerische Flexibilität des Algorithmus [71], die durch den MRT-Algorithmus verbessert werden kann [51], gering. Diese wurde von [84] zuerst theoretisch beschrieben und aus algorithmischer Sicht in [85] genauer analysiert. Verschiedene Randbedingungen, die für den Algorithmus verwendet werden können, sind in [86,87] diskutiert, eine Analyse der Relaxationsparameter ist außerdem in [88] zu finden. In [89] wurde die Galilei-Invarianz des Algorithmus geprüft und bestätigt. Im Folgenden soll die wesentliche Idee des Algorithmus aus [84,85] skizziert werden. Im Wesentlichen wird in der BGK-Gleichung 3.32 die Kollisionsfrequenz durch Matrizen ersetzt  $\omega \cdot \delta t \rightarrow M S M^{-1}$ . Außerdem werden nicht mehr die einzelnen  $f$  betrachtet, sondern die Vektoren, die sich aus den  $Q$  Komponenten  $f_0 - f_{18}$  aufspannen:

$$\vec{f}(\vec{r} + \vec{\xi}_i \cdot \delta t, t + \delta t) = \vec{f}(\vec{r}, t) + M^{-1} \hat{S} M \cdot [\vec{f}^{\text{eq}}(\vec{r}, t) - \vec{f}(\vec{r}, t)] \quad . \quad (3.36)$$

Wie in [84] erklärt, kann durch eine Gram-Schmidt-Orthogonalisierung ein System der Basisvektoren im Momentenraum aufgespannt werden. Dabei ist  $M$  die Matrix, die die Basisvektoren des Geschwindigkeitsraums  $\vec{f}$  beziehungsweise  $\vec{f}^{\text{eq}}$  in den Momentenraum transferiert. Für die Nichtgleichgewichtsverteilungen heißt das

$$\vec{\mu} = M \times \vec{f} \quad . \quad (3.37)$$

Die Beschaffenheit der Matrix  $M$  folgt aus den jeweiligen unabhängigen Momenten wie zum Beispiel die Dichte in Gleichung (3.27) und die Geschwindigkeit in Gleichung (3.28). Wie in Kapitel 3.4.1 erklärt, sind einige der Momente kollisionsinvariant, zum Beispiel die Dichte und die Geschwindigkeit. Für die Dichte beispielsweise ergibt sich aus der Orthogonalisierung die Transformation

$$\mu_0 = \varrho = (1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1) \cdot \vec{f} = M_{0i} \cdot \vec{f} \quad . \quad (3.38)$$

So werden wie in [84] die 19 Momente für das  $D3Q19$  Modell wie Massendichte, kinetische Energie, Impuls, Energiefluss etc. bestimmt. Die dort berechneten Matrizen  $M$  und ihre inverse Matrix  $M^{-1}$ , angepasst an die Notation dieser Arbeit, sind im Anhang B in den Gleichungen (B.2) und (B.3) zu finden. Gleichung (3.36) wird so zu

$$\vec{f}(\vec{r} + \vec{\xi}_i \cdot \delta t, t + \delta t) = \vec{f}(\vec{r}, t) + M^{-1} \hat{S} M \cdot [\vec{\mu}^{\text{eq}}(\vec{r}, t) - \vec{\mu}(\vec{r}, t)] \quad . \quad (3.39)$$

Die Matrix  $\hat{S}$  ist die durch  $\hat{S} = M S M^{-1}$  diagonalisierte Matrix der Matrix  $S$ , deren Eigenvektoren die Basisvektoren des Momentenraums sind. Die Eigenwerte der Matrix  $\hat{S}$  sind die Kollisionsparameter im Momentenraum, die demnach prinzipiell 19 verschiedene Werte haben können. Dies ist die wesentliche Verbesserung im Vergleich zum SRT-Algorithmus, in dem die Kollision auf einen Kollisionsparameter beschränkt ist. Die Wahl für die Eigenwerte  $\lambda_i$  erfolgt gemäß [90] und ist im Anhang B in Gleichung (B.1) zu finden. Sie sind abhängig von der Kollisionsfrequenz  $\tau$ , die mit Gleichung (3.33) bestimmt wird. Die Eigenwerte der kollisionsinvarianten Momente sind null. Setzt man alle anderen gleich  $\omega$ , erhält man den speziellen Fall des BGK-Algorithmus. Dies wurde genutzt, um die Implementierung des MRT-Algorithmus zu testen. Ein wesentliches Teilziel dieser Arbeit ist es, die beiden Algorithmen SRT und MRT zu vergleichen. Diesbezüglich finden im Kapitel 5 einige Analysen statt, die die Abhängigkeiten der Strömungs-Kennzahlen von den Kollisionsparametern untersuchen. Ähnliche Analysen wurden in [71] durchgeführt.

### 3.5.3. Mehrphasen und Mehrkomponenten

Mit dem LB-Algorithmus lassen sich Mehrkomponenten-Modelle und Mehrphasen-Modelle beschreiben. Auch eine Kombination aus beiden Modellen ist möglich. Mit Mehrkomponenten sind zwei oder mehr verschiedene Stoffe gemeint. Sobald einer oder mehrere der beteiligten Stoffe in unterschiedlichen Aggregatzuständen vorkommen, ist es ein Mehrphasen-Modell. Das *color-fluid*-Modell [91, 92] wurde als erstes Modell basierend auf [93, 94] entwickelt und beschreibt ein Mehrphasen- beziehungsweise Mehrkomponenten-Modell eines nichtmischbaren Fluids. Es basiert auf dem Ansatz, durch zusätzliche Terme die Oberflächenspannung und Phasentrennung zu berücksichtigen. Eine typische Anwendung ist die Mischung von Öl und Wasser. Das Shan-Chen-Modell (SC-Modell) [95–97] wurde kurze Zeit später eingeführt. Es basiert auf der Annahme der Wechselwirkung zwischen den Molekülen, die die Wechselwirkung, die durch den Kollisionsterm gegeben ist, ergänzt. Die Wechselwirkung kann sowohl zwischen

den Molekülen einer Spezies als auch zwischen denen unterschiedlicher Spezies angenommen werden. Zusätzliche äußere Kräfte wie die Gravitation oder die Interaktion mit Wänden können leicht hinzugefügt werden. Ein weiteres Modell ist das Freie-Energie-Modell [98,99], welches fordert, dass das Freie-Energie-Funktional für die Gleichgewichtsverteilung null wird und lieferte so eine thermodynamisch konsistente Beschreibung eines Mehrphasen-Modells.

In ihren ursprünglichen Versionen hatten alle Modelle Defizite wie zum Beispiel die Modellierung von großen Dichteunterschieden. Wie in [100–102] zusammengetragen, gibt es aber viele Erweiterungen für die einzelnen Modelle, die diese Defizite beheben. Ein Vergleich, der die Genauigkeit der einzelnen Modelle in porösen Medien für nichtmischbare Fluide bewertet, ist in [103] zu finden. Dort wird beschrieben, dass das SC-Modell für diesen Fall ungenauere Ergebnisse liefert als das *color-fluid*- beziehungsweise das Freie-Energie-Modell. Einige bekannte Probleme des ursprünglichen SC-Modells für den Mehrphasen-Fall sind in [101,102] zu finden: die eingeschränkte thermodynamische Gültigkeit, die fehlende lokale Massenerhaltung, die Unmöglichkeit Viskositäten unterschiedlicher Phasen zu beschreiben und die Einschränkung bei der Beschreibung von Oberflächenspannung. Einige dieser Probleme konnten in Erweiterungen des Modells überwunden werden, um nichtlineare Zustandsgleichungen zu erhalten [104] oder die Oberflächenspannung zu kontrollieren [105]. Da in der HT-PEFC-GDL bei einer Betriebstemperatur von 160 °C keine Phasenübergänge auftreten und somit eine reine Mehrkomponenten-Simulation betrieben wird, treffen diese Probleme hier allerdings nicht zu. Für den betrachteten Fall der mischbaren idealen Gase ist es mit dem SC-Modell zudem möglich, den Algorithmus wesentlich zu vereinfachen und damit eine effiziente Berechnung zu gewährleisten. Dies ist der Grund der Wahl des SC-Algorithmus für das Mehrkomponenten-Modell in dieser Arbeit. Die Kombination des Algorithmus mit dem MRT-Verfahren ist möglich und kann im allgemeinen Fall die Reichweite des Algorithmus in Bezug auf das Dichteverhältnis der beiden Komponenten verbessern [106]. Im Folgenden wird der Algorithmus in der BGK-Version kurz beschrieben.

Im einkomponentigen Lattice-Boltzmann-Modell transportieren die Moleküle im Mittel makroskopische Störungen in andere Regionen des Systems und geben diese durch Kollisionen an andere Moleküle weiter. Die Kollision in diesem Modell berücksichtigen nur die direkte Wechselwirkung durch Stoßübertragung. Dies ist unter anderem eine typische Voraussetzung in der Gaskinetik und führt auf das ideale Gasgesetz in Gleichung (3.30), die lineare Abhängigkeit von Druck und Dichte. Die Berücksichtigung eines Wechselwirkungspotentials über die einfache Stoßübertragung hinaus führt thermodynamisch zu einer realeren Beschreibung des Gases. Die resultierende Druck-Dichte Beziehung ist nichtlinear und beinhaltet so die Mehrphasigkeit einzelner Komponenten.

Für die BGK-Methode wurde dieses Modell durch X. Shan und H. Chen [95–97] eingeführt. Jede Komponente wird wie in Gleichung (3.32) mit der Lattice-BGK-Gleichung berechnet. Die  $\sigma$ -Komponenten im betrachteten Gas werden wie folgt durch ebenso viele Wahrscheinlichkeitsverteilungen beschrieben:

$$f_{\sigma,i}(\vec{r} + \vec{\xi}_i \cdot \delta t, t + \delta t) = f_{\sigma,i}(\vec{r}, t) + \omega_{\sigma} \cdot \delta t \cdot [f_{\sigma,i}^{\text{eq}}(\vec{r}, t) - f_{\sigma,i}(\vec{r}, t)] \quad (3.40)$$

Die Kollisionsfrequenz  $\omega_{\sigma}$  wird analog zur Gleichung (3.33) bestimmt durch

$$\omega_{\sigma} = \frac{c_s^2}{\nu_{\sigma} + \delta t c_s^2/2} \quad (3.41)$$

und analog die Gleichgewichtsverteilung

$$f_{\sigma,i}^{\text{eq}}(\vec{x}, t) = \varrho_{\sigma} \cdot t_p \cdot \left[ 1 + \frac{v_{\sigma}^{\alpha} \xi_{\alpha,i}}{c_s^2} + \frac{v_{\sigma}^{\alpha} v_{\sigma}^{\beta}}{2 c_s^2} \left( \frac{\xi_{i,\alpha} \xi_{i,\beta}}{c_s^2} - \delta_{\alpha\beta} \right) \right] \quad (3.42)$$

Die Molekülgeschwindigkeiten  $\vec{\xi}_i$  und die Gewichtungsfaktoren  $t_p$  richten sich, wie in Kapitel 3.4.3 beschrieben, nach dem betrachteten Gitter. Der Einfluss der Kollisionen der Moleküle im einphasigen BGK-Modell ist lokal beschränkt und somit auch der Einfluss auf die makroskopischen Strömungsgeschwindigkeiten in Gleichung (3.14). Diese erste Erweiterung bedeutet bisher lediglich, dass derselbe Algorithmus für verschiedene Komponenten ausgeführt wird je nach Wahl von  $\sigma$  und alle Größen, so auch die Geschwindigkeit und die Dichte, mit einem Index  $\sigma$  versehen werden.

Als wesentliche Idee des SC-Modells wird die zusätzliche Wechselwirkung über die makroskopische Geschwindigkeit eingebracht. Dafür wird zunächst eine Gesamtgeschwindigkeit der beteiligten Komponenten  $\vec{v}'$  festgelegt. Die Momente vor und nach der Kollision müssen erhalten sein. Die Summe der Massenströme der einzelnen Komponenten entspricht daher der gemeinsamen Gesamtgeschwindigkeit  $\vec{v}'$ , die im Gleichgewicht nach der Kollision beide Komponenten annehmen:

$$\vec{v}' = \sum_{\sigma} \frac{\varrho_{\sigma} \vec{v}_{\sigma}}{\tau_{\sigma}} \Big/ \sum_{\sigma} \frac{\varrho_{\sigma}}{\tau_{\sigma}} \stackrel{(3.27)}{=} \sum_{\sigma} \sum_i \frac{f_{\sigma,i} \vec{\xi}_i}{\tau_{\sigma}} \Big/ \sum_{\sigma} \frac{\varrho_{\sigma}}{\tau_{\sigma}} \quad (3.43)$$

Zusätzlich zur Wechselwirkung durch die Kollisionen führt das SC-Modell eine Fernwechselwirkung zwischen den Molekülen ein. Die Annahme ist, dass sich diese Fernwechselwirkung auf die Massenströme der einzelnen Komponenten auswirkt. Dividiert man den Massenstrom durch die Dichte  $\varrho_{\sigma}$ , ergibt sich die resultierende Geschwindigkeit  $\vec{v}_{\sigma}$  der beteiligten Komponenten demnach durch die Addition eines Potentialterms mit der Kraft  $\vec{F}_{\sigma}$  zur gemeinsamen Geschwindigkeit  $\vec{v}'$ :

$$\vec{v}_{\sigma} = \vec{v}' + \frac{\tau_{\sigma} \vec{F}_{\sigma}}{\varrho_{\sigma}} \quad (3.44)$$

Dies ist die Gleichgewichts-Geschwindigkeit, mit der die Gleichgewichtsverteilung in Gleichung (3.42) berechnet wird. Das System relaxiert damit zu einer Gleichgewichtsverteilung mit einer Geschwindigkeit, die von der Fernwechselwirkung beeinflusst ist. Die Geschwindigkeit des Gemisches ist im Falle ohne Wechselwirkung mit  $\vec{v}'$  identisch [104].

Das Potential in Gleichung (3.44) ist eine Fernwechselwirkung. Im betrachteten Modell wird nur die Wechselwirkung mit den nächsten Nachbarn auf dem Gitter berücksichtigt. Es wird unterschieden zwischen Gitternachbarn, die ein Feststoff-Gitterpunkt darstellen, und solchen, die ein Fluid-Gitterpunkt abbilden (Fluid-Fluid und Fluid-Wand Wechselwirkung). Typischerweise werden effektive Massen  $\psi_{\alpha}$  eingeführt, zu denen die Stärke der Wechselwirkung proportional ist. Mit der Wahl der effektiven Massen wird die Zustandsgleichung des Systems beeinflusst. Durch nicht-lineare Dichte-Druck-Beziehungen entstehen so Phasenübergänge [95, 104]. Auch eine generelle Kraft wie etwa die Gravitation kann global addiert werden [107]. Für den hier betrachteten Fall der HT-PEFC wird die Fernwechselwirkung vernachlässigt, sodass mit der immer noch geltenden Dichte-Druck-Beziehung in Gleichung (3.30) ein ideales Gasgemisch entsteht und dementsprechend die Diffusion beschrieben wird [108], eine rein von Kollisionen getriebene Strömung. Die Kopplung entsteht über die gemeinsame Geschwindigkeit  $\vec{v}'$ , die der Geschwindigkeit  $\vec{v}_{\sigma}$  für diesen Fall entspricht. Die Massenerhaltung ist im Gegensatz zum Fall  $\vec{F} \neq 0$  gewährleistet.

Der SC-Algorithmus als Erweiterung zum klassischen LB-Schema aus Tabelle 3.3 ist in Tabelle 3.4 dargestellt (Erweiterungen in blau). Für den Fall idealer Gase mit  $\vec{F} = 0$  vereinfacht sich der Algorithmus und die Schritte i) und iii) fallen weg. Erfolgreich angewendet werden konnte dieses Modell unter anderem in [107] zur Beschreibung eines Tropfens in einem Kanal, in [90]

Tabelle 3.4.: Schema des LB-Algorithmus mit Erweiterung um das SC-Modell - die Erweiterung ist in blau dargestellt:

#### Präprozess

---

Ein- und Ausströmung an den Rändern für  $\sigma$  Komponenten  
+ Initialisierung Shan-Chen

↓ ↓ ↓

#### Algorithmus

---

1. Transport des Nichtgleichgewichts für  $\sigma$  Komponenten
2. Kollision (Massen- und Impulserhaltung) für  $\sigma$  Komponenten
  - A Berechne makroskopische Größen (+ Randbedingungen)
    - i) Potential  $\psi_\sigma$  und Kraft  $\vec{F}_\sigma$  berechnen
    - ii) Gesamtgeschwindigkeit  $\vec{v}'$  bestimmen
    - iii) Gleichgewichts-Geschwindigkeit  $\vec{v}_\sigma$  ausrechnen - ersetzt berechnete Geschwindigkeit in A
  - B Berechne Gleichgewichtsverteilung
  - C Relaxation

↓ ↓ ↓

#### Postprozess

---

Makroskopische Größen und Kennzahlen für  $\sigma$  Komponenten  
in Simulationsgebiet ausgeben

für die Simulation in porösen Medien und in [109] bei Studien zur Oberflächenspannung. In [90] ist der SC-Algorithmus mit dem MRT-Algorithmus kombiniert, was in dieser Arbeit ebenfalls geschieht.

Mit der Mehrkomponenten-Erweiterung sind die in dieser Arbeit verwendeten Algorithmen erklärt worden. Im Kapitel 3.6 soll beschrieben werden, wie man die aus der Strömungssimulation gewonnen Ergebnisse mit Kennzahlen klassifiziert, um sie sinnvoll zu vergleichen.

### 3.6. Klassifizierung von Strömung

Mit der in den Kapiteln 3.4 und 3.5 vorgestellten Methode können (im Fall dieser Arbeit laminare) Strömungen in beliebigen Geometrien mit der Einschränkung kleiner Knudsenzahlen und kleiner Machzahlen simuliert werden. Die Ergebnisse dieser Simulationen sind das Geschwindigkeits-Profil und das Dichte- beziehungsweise Druck-Profil in der Simulations-Geometrie. Um Strömungen zu charakterisieren, ist es sinnvoll, Kennzahlen einzuführen, die die Ergebnisgrößen in Beziehung setzen. So ist ein direkter Vergleich der makroskopischen Strömungseigenschaften in unterschiedlichen Geometrien möglich, sei es untereinander oder mit Daten aus dem Experiment. In dieser Arbeit werden die Kennzahlen Permeabilität und Tortuosität verwendet. Für laminare Strömung mit Reynoldszahlen  $Re < 1$  [110, S. 126] gilt das Darcy'sche Gesetz. Hier ist als Proportionalitätsfaktor die Permeabilität  $\kappa$  definiert [110, S. 133]. Für eine Durchflussrate  $Q = A v_{\text{ref}}$  durch die Fläche  $A$  gilt [111]:

$$\kappa = \frac{\rho v_{\text{ref}} \nu}{\Delta p / \Delta x} . \quad (3.45)$$

Diese Gleichung gibt das Verhältnis vom Massenstrom eines Stoffes mit der Viskosität  $\nu$  und der Druckdifferenz  $\Delta p$  zwischen Eingang und Ausgang der Geometrie der Länge  $\Delta x$  an. Je mehr Widerstand das poröse Medium dem einströmenden Gas entgegenbringt, desto größer wird der Druckabfall entlang der Geometrie und die Permeabilität wird geringer. Die Druckdifferenzen sind messbar, weshalb sich die Permeabilität gut eignet, um modellierte Strömungen mit experimentellen Werten zu vergleichen. Die Geschwindigkeit  $v_{\text{ref}}$  wird historisch als Filtergeschwindigkeit bezeichnet. Sie wird wie zuvor über die mittlere Geschwindigkeit der Eingangs-Fläche der zu untersuchenden Struktur festgelegt.

Die Tortuosität beschreibt, wie stark die Strömung durch ein poröses Medium von der Länge des Systems in Richtung des Massenflusses abweicht [112]. Im Allgemeinen ist die Tortuosität demnach so definiert, dass die Durchströmung eines leeren Kanals die Tortuosität 1 ergibt und die Tortuosität durchströmter Materialien Werte größer 1. Wie in [112] dargestellt, sind unterschiedliche Definitionen der Tortuosität  $\tau$  in Bezug auf ein Kapillarmodell möglich, von denen in dieser Arbeit die folgende verwendet wird:

$$\tau = \sum_j^{PR} |\vec{v}|_j / \sum_j^{PR} v_{s,j} . \quad (3.46)$$

Hierbei ist  $s$  ist Hauptströmungsrichtung und  $PR$  der Porenraum. Möchte man Diffusionseigenschaften bei der Charakterisierung von Geometrien mit berücksichtigen, eignen sich die beiden in Kapitel 3.6 eingeführten Kennzahlen in dieser Form nur bedingt. Im Einkomponenten-System wurden die absolute Molekülgeschwindigkeit  $\vec{\xi}_i$  und die Strömungsgeschwindigkeit  $\vec{v}$  definiert. Letztere ist die Geschwindigkeit, die mit den LB-Simulationen berechnet wird. Im Mehrkomponenten-Modell setzt sich die Gesamtgeschwindigkeit des Gemisches  $\vec{v}_{\text{Gem}}$  aus den einzelnen Geschwindigkeiten der Komponenten zusammen. Aufgrund der zusätzlichen Komponente

wird zudem die Diffusionsgeschwindigkeit  $\vec{u}_\sigma$  eingeführt, die mit der Strömungsgeschwindigkeit für die einzelnen Komponenten  $\vec{v}_\sigma$  über Gleichung (3.47) zusammenhängt [113]:

$$\vec{v}_\sigma = \vec{v}_{\text{Gem}} + \vec{u}_\sigma \quad . \quad (3.47)$$

Der Massenstrom  $\dot{m}$  eines Gases mit der Dichte  $\varrho$  hängt mit  $\dot{m}_\sigma = \varrho_\sigma u_\sigma A$  von der Strömungsgeschwindigkeit - hier der Betrag der Diffusionsgeschwindigkeit - und dem Querschnitt  $A$  ab. Das erste Fick'sche Gesetz [113] beschreibt eine Komponente, die in eine ruhende zweite Komponente diffundiert. Mit der Beziehung  $c_\sigma^x = \varrho_\sigma / M_\sigma$  für die Konzentration beschreibt es für ideale Gase den folgenden Zusammenhang für die Stoffstromdichte  $J^\text{st}$

$$J_\sigma^\text{st} = \frac{\dot{m}_\sigma}{A} = \frac{\dot{m}_\sigma}{A M_\sigma} = -D \frac{\partial c_\sigma^x}{\partial x} = -\frac{D}{RT} \frac{\partial p_\sigma}{\partial x} \quad , \quad (3.48)$$

wobei der Molenstrom über  $\dot{n} = \dot{m} \cdot M$  mit dem Massenstrom korreliert. Es gibt an, welcher Massenstrom sich, bei einer Partialdruckdifferenz  $\partial p_\sigma / \partial x$  der diffundierenden Komponente, einstellt. Der Diffusionskoeffizient  $D$  ist dabei ein Proportionalitätsfaktor, der von den beiden beteiligten Komponenten abhängt. Der Massenstrom in dieser Gleichung erfolgt nur aufgrund von Diffusion, ohne dass ein konvektiver Stofftransport beteiligt ist. Es ist oft schwierig einen Diffusionskoeffizienten experimentell zu bestimmen, insbesondere für Gase ist es kaum möglich alle konvektiven Strömungen zu unterdrücken [114, S. 268].

Bisher wurde angenommen, dass die Stoffe im Diffusionsprozess nur mit sich selbst beziehungsweise den Molekülen des anderen Stoffes kollidieren. Sobald die Diffusion durch ein poröses Medium beschrieben wird, wird ein Gas, wenn es sich im Mittel entlang eines Konzentrationsgradienten bewegt, zusätzlich auf Hindernisse (Feststoff) treffen, die es umströmt. Daraus ergibt sich der sogenannte effektive Diffusionskoeffizient. Je nach betrachteter Struktur sind verschiedene Definitionen möglich [115]. In dieser Arbeit wird die allgemeine Form verwendet [9], die auf experimentellen Ergebnissen in der Literatur beruht:

$$D_\text{eff} = \frac{\Phi}{\tau} D \quad . \quad (3.49)$$

Hierbei ist  $\Phi$  die Porosität des Materials, also der Anteil des Porenraums in der Simulationsumgebung. Der Vollständigkeit halber sei hier erwähnt, dass Gleichung (3.49) einen eingeschränkten Gültigkeitsbereich hat und nur im Bereich der molekularen (normalen) Diffusion gilt. Dies ist der Bereich, in dem die mittlere freie Weglänge wesentlich kleiner ist als der Porendurchmesser. Die Moleküle kollidieren im Mittel wesentlich häufiger mit anderen Molekülen als mit der Wand, sodass deren Einfluss gering ist. Knudsen-Diffusion tritt auf, wenn die mittlere freie Weglänge mindestens in der Größenordnung des Porendurchmessers liegt und die Moleküle hauptsächlich mit der Wand interagieren. Deren Oberfläche sorgt dann für einen zusätzlichen Einfluss auf die Bewegung der Moleküle [35]. Mit der Abschätzung in Kapitel 3.3.3 und außerdem, weil kleine Knudsen-Zahlen als Voraussetzung für den LB-Algorithmus angenommen wurden, wird die Knudsen-Diffusion in dieser Arbeit nicht betrachtet.

## 4. Ablauf einer Simulation

Für die LB-Simulationen in dieser Arbeit wird das selbstentwickelte Programm Julabos verwendet. Die Simulationen werden auf dem Hochleistungsrechner Juropa des JSC am Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Typische Prozessorzahlen für die Simulationen reichen von 500 bis 2000. Der Programmaufbau orientiert sich im Wesentlichen an den Tabellen 3.3 beziehungsweise 3.4, die den Algorithmus zusammenfassen. Julabos stellt eine Implementierung dar, die auf dem *message passing interface* (MPI) [116] basiert. Näheres zu den wesentlichen Parallelisierungskonzepten der Software ist in [117] zu finden. Im Folgenden sollen kurz anhand der verschiedenen Schritte einer typischen Simulation Aspekte diskutiert werden, die für diese Arbeit wichtig sind. Im Präprozess werden zunächst die für die Simulation nötigen Eingangsgrößen berechnet, die vom Anwender über eine Eingabedatei spezifiziert werden. Um die Geometrie aufzubauen, in der die Strömungssimulation stattfindet, wird die dreidimensionale Struktur schichtenweise aus zweidimensionalen binarisierten Bildern, wie in Abbildung 4.1 dargestellt, eingelesen. Die Größe der Bilder legt den Querschnitt des Gebiets, die Anzahl der Bilder die Dicke des Gebiets fest. Die kubische Geometrie wird so in ein Gitter eingeteilt mit gleichmäßigen Abständen zwischen den Gitterpunkten. In der realen Simulation der GDL wird oft noch ein Vorlauf beziehungsweise Nachlauf eingeführt, wie in Kapitel 5 diskutiert.

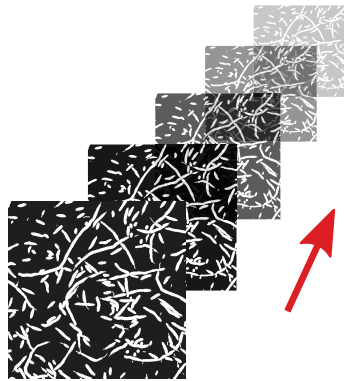


Abbildung 4.1.: Einlesen der binarisierten Bilder im Programm Julabos am Beispiel eines GDL-Materials. Durch die eingelesene Geometrie entsteht ein kubisches dreidimensionales Gitter.

Jedem Gitterpunkt im Simulationsgebiet wird so für jede Komponente die Eigenschaft Fluid, Wand, Einlass oder Auslass zugewiesen und mit Eingangswerten in SI-Einheiten für die makroskopischen Größen belegt, die dann in Gittereinheiten (l.u.) umgerechnet werden (siehe Anhang A). Der Kollisionsparameter  $\omega$  stellt gemäß Gleichung (3.33) eine Verbindung zur makroskopischen Viskosität dar und kann zudem angepasst werden, um über die Ähnlichkeitsbeziehung der Reynoldszahl numerische Vorteile zu erzielen (siehe Kapitel 3.4.4). Aus theoretischer Sicht



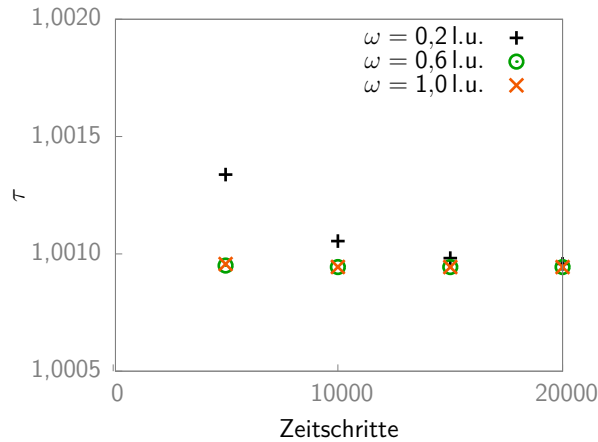


Abbildung 4.2.: Die Werte der Tortuosität während einer LB-Simulation sind über die Zeitschritte aufgetragen. Es ist ein Vergleich von MRT-Simulationen für verschiedene  $\omega$  gezeigt.

gibt es für den Kollisionsparameter folgende Einschränkung [50, S. 180]:

$$0 < \omega < 2 \quad , \quad (4.1)$$

die im Programm über die Umrechnung in Gittereinheiten garantiert wird.

Nach dem Präprozess wird im Algorithmus die eigentliche LB-Simulation durchgeführt für die in den Eingangsparametern festgelegte Zahl von Zeitschritten. Sowohl der SRT- als auch der MRT-Algorithmus sind implementiert. Welche der beiden Algorithmen aus physikalischer Sicht die richtige Wahl ist, ist eine der Fragestellungen dieser Arbeit. Bezogen auf die Rechenoperationen pro Schleifendurchlauf benötigt der MRT-Algorithmus an sich in etwa 20 % mehr Rechenzeit als der SRT-Algorithmus [71]. Je nach Anwendungsfall kann allerdings die Konvergenzgeschwindigkeit, also die Anzahl der Schleifendurchläufe bis zur Konvergenz, auch von der Wahl betroffen sein, sodass der MRT-Algorithmus für bestimmte Fälle insgesamt weniger Rechenzeit verbraucht.

Die Konvergenzgeschwindigkeit hängt für beide Algorithmen auch von der Wahl des Kollisionsparameters  $\omega$  ab. Für den MRT-Algorithmus wurde in Abbildung 4.2 die Konvergenzgeschwindigkeit für verschiedene  $\omega$  verglichen. Man erkennt, dass die Konvergenz für den Wert  $\omega = 0,2$  l.u. deutlich schlechter ist als für die anderen Werte. Aus diesen und ähnlichen Analysen wurde eine numerisch günstige Wahl auf den Bereich  $1,0 \text{ l.u.} < \omega < 1,4 \text{ l.u.}$  sowohl für den MRT- als auch den SRT-Algorithmus festgelegt.

Die Ergebnisse aus dem Algorithmus werden dem Postprozess übergeben und die Gittereinheiten in makroskopische SI-Einheiten umgerechnet und in Ausgabedateien geschrieben. Die Kenngrößen Permeabilität und Tortuosität werden ebenfalls in diesem Schritt, wie in Kapitel 3.6 beschrieben, berechnet. Die Tortuosität als Strukturgröße wird nur in der tatsächlichen Struktur auch ohne zugefügten Vor- beziehungsweise Nachlauf berechnet. In die Permeabilität in Gleichung (3.45) geht die Druckdifferenz des betrachteten Gebietes ein. Die simulierte Druckdifferenz besteht aus der numerischen Ableitung  $\Delta p / \Delta x$  und somit aus der Differenz der ersten und letzten Schicht des betrachteten Gebietes. Um die Genauigkeit dieser Größe zu erhöhen können aus den Ergebnissen der Simulation mehrere Permeabilitäten entlang der ersten Schichten der GDL berechnet und zu einem Mittelwert zusammengefasst werden. Das heißt zum

---

Beispiel für die zweite Permeabilität eine Differenz aus der zweiten und vorletzten Schicht des Simulationsgebiets mit angepassten Eingangsgrößen und so weiter. Aus Plausibilitäts-Gründen wird zudem für jede Simulation überprüft, dass der Massenstrom entlang der Strömungsrichtung erhalten bleibt.



## 5. Einkomponenten-Modell

Das selbstentwickelte Programm Julabos ermöglicht dreidimensionale Strömungssimulationen auf der Grundlage des LB-Algorithmus. Die Eingangsparameter der einkomponentigen Strömungssimulationen in diesem Kapitel sind immer so gewählt, dass sie den Betriebsbedingungen einer HT-PEFC an der Anode entsprechen. In jedem dieser Abschnitte für sich genommen wird eine unabhängige Fragestellung untersucht sowohl in Bezug auf den Algorithmus als auch auf die Geometrie. Die untersuchten Geometrien entsprechen den Ausschnitten I und II in Abbildung 2.1 in der HT-PEFC. Die wesentlichen Aspekte der einzelnen Abschnitte sind im Folgenden zusammengefasst.

**Leerer Kanal:** Dieses Kapitel dient als Grundlage zur Code-Validierung und Festlegung der Modellparameter. Insbesondere werden die Einflüsse des Kollisionsparameters  $\omega$  und der Gitterauflösung untersucht.

**GDL:** Mit den Erkenntnissen des leeren Kanals ist der Parameterbereich des LB-Algorithmus festgelegt und dient als Grundlage zur Analyse beliebiger Geometrien. Zunächst wird die GDL-Geometrie analysiert und die Ergebnisse bewertet. Geometrische Aspekte und der Vergleich der Algorithmen MRT und SRT stehen dabei im Vordergrund.

Anschließend wird mit dem Algorithmus ein Geometrie-Modell validiert. Dies geschieht, indem die freien Parameter des Modells so angepasst werden, dass sie dieser in Bezug auf die Strömungssimulation entsprechen. Daraufhin wird durch stochastische Betrachtungen auf systematische Fehler der Berechnungen, die dem Verfahren an sich oder den gewählten Randbedingungen zu Grunde liegen, geprüft.

**Kanal-Steg:** Mittels Synchrotron-Tomografie erzeugte Realdaten werden als Grundlage genommen, ein Kanal-Steg-Szenario, wie es in der Brennstoffzelle vorkommt, zu untersuchen. Insbesondere wird die Homogenität der Gasströmung an der Elektroden-schicht abhängig vom Kompressionsgrad der Bipolarplatten analysiert und bewertet.

## 5.1. Leerer Kanal

In diesem Kapitel wird zunächst der prinzipielle Simulationsaufbau beschrieben. Dieser stellt die Grundlage für die folgenden Betrachtungen dar. In Kapitel 5.1.2 wird überprüft, ob die Software experimentell bekannte Druckgradienten und daraus resultierende Strömungs-Kennzahlen korrekt wiedergibt. Im darauffolgenden Abschnitt 5.1.3 werden anhand des Geschwindigkeits-Profiles im hypothetischen leeren Kanal sinnvolle Parameterbereiche zunächst für die Skalierung und dann für den Kollisionsparameter  $\omega$  gesucht. Der Vergleich der beiden Algorithmen SRT und MRT (vergleiche Kapitel 3.5.2) ist ebenfalls Bestandteil dieser Analyse.

### 5.1.1. Aufbau

In Kapitel 3.3.3 wurde die Gasströmung in der realen Brennstoffzelle beschrieben, für die im Folgenden die Wasserstoff-Strömung an der Anode betrachtet wird. Im Modell wird entlang der Kanäle in der Bipolarplatte ein einheitlicher Druck angenommen. Die treibende Kraft für die Strömung liegt daher zwischen Kanal und Elektrode. In diesem Bereich herrschen Druckunterschiede entlang der GDL.

Die geometrische Struktur in diesem Abschnitt ist ein Kanal mit rechteckigem Querschnitt mit den makroskopischen Abmessungen  $1,5 \text{ mm} \times 0,15 \text{ mm} \times 0,15 \text{ mm}$ . Dieses Modell ist eine erste grobe Näherung für die Brennstoffzelle und entspricht dem Ausschnitt Ia in Abbildung 2.1, dem Schema der HT-PEFC. Zur Validierung wird die GDL zunächst nicht berücksichtigt, sodass ein leerer Kanal betrachtet wird. In Abbildung 5.1 sind die Geometrie und die Randbedingungen der Modellannahme skizziert. Die Haupt-Fließrichtung zur Elektrode ist als  $x$ -Richtung definiert. Die  $y$ -Richtung ist die Richtung quer zum Kanal und die  $z$ -Richtung entlang des Kanals. Aufgrund des einheitlichen Drucks im Gaskanal der Bipolarplatte ist in Bezug auf die  $y$ - und  $z$ -Richtung keine Vorzugsrichtung für die Gasströmung vorgegeben. Für dieses Modell ist die treibende Kraft im Gaskanal nur in  $x$ -Richtung - in Richtung der Elektrode - gerichtet. Die Randbedingungen wurden gemäß der Betriebsbedingung in der HT-PEFC gewählt. Der Zusammenhang wurde in Kapitel 3.3.2 erläutert. Zudem wird die  $x$ -Eingangsgeschwindigkeit  $v_0$  als homogen und die Dichte am Auslass als konstant angenommen. Die Werte für die Randbedingungen sowie die Stoffeigenschaften von Wasserstoff sind aus Tabelle 3.1 zu entnehmen. Für die Randbedingungen an den Außenwänden gelten (non-slip) Bounce-Back-Randbedingungen (siehe Kapitel 3.5.1). Der Kollisionsparameter aus Gleichung (3.33) wird zunächst im Bereich  $1,0 < \omega < 1,2$  gewählt.

### 5.1.2. Validierung

Es wird ein rechteckiger Kanal mit der Abmessungen  $1000 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.}$  betrachtet. Die makroskopische Auflösung zwischen zwei Gitterpunkten ist  $1,5 \mu\text{m}$ . Zur Validierung des Codes sollen die verschiedenen makroskopischen Größen und die aus diesen berechneten Kennzahlen mit analytischen und gemessenen Werten aus der Literatur verglichen werden. Als erstes wird der Druckgradient zwischen Mitte und Ende beziehungsweise Mitte und Anfang des Kanals analysiert. Aus der Literatur [118] lässt sich die experimentell ermittelte Formel für den Druckgradienten  $\Delta p_{\text{ref}}$  in einem Rohr mit rechteckigem Querschnitt  $d$  entnehmen<sup>1</sup>:

$$\Delta p_{\text{ref}} = \frac{32 \nu \varrho v_{\text{ref}} \Delta x}{d^2} \varphi \quad . \quad (5.1)$$

<sup>1</sup>Für den Druckverlust für ein Rohr, dessen Querschnitt von dem eines runden Rohres abweicht, ist in Gleichung (5.1) der hydraulische Durchmesser  $d_{\text{hyd}}$  mit dem Umfang  $U$  des Rohres einzusetzen:  $d_{\text{hyd}} = 4A/U$ .

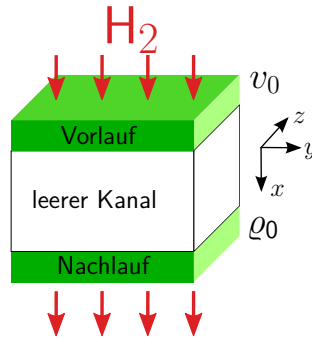


Abbildung 5.1.: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Ein rechteckiger leerer Kanal wird mit Wasserstoff durchströmt. Ein konstantes Geschwindigkeits-Profil  $v_0$  ist am Eingang vorgegeben, am Ausgang eine konstante Dichte  $\varrho_0$ . An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt.

Die experimentelle Konstante ist  $\varphi = 0,89$ . Die Viskosität  $\nu$ , die Dichte  $\varrho$  des an der Anode strömenden Gases und die mittlere Geschwindigkeit der Schicht am Einlass als Referenzgeschwindigkeit  $v_{\text{ref}}$  sind die Eingangsparameter der Simulation gemäß Tabelle 3.1. Die modellierte Änderung des Druckes  $\Delta p$  über die Kanallänge  $\Delta x$  kann nun mit Referenz-Werten aus der Literatur für dieselben Eingangsparameter verglichen werden. Um  $\Delta p$  im Modell zu bestimmen, wird für jede  $yz$ -Schicht der Mittelwert  $\bar{p}$  berechnet. Der Mittelwert bei  $1/2 \Delta x$  ist der Referenzwert  $\bar{p}_{\text{fix}}$ , mit dem die Druckdifferenzen gebildet werden. So gilt zum Beispiel für die erste Schicht  $\Delta p_{\text{sim},1} = \bar{p}_1 - \bar{p}_{\text{fix}}$ . In Abbildung 5.2 ist der mit dem Wert aus Gleichung (5.1) normierte Wert aufgetragen. Die Abweichung vom Wert 1 gibt demnach die Genauigkeit der Methode in Bezug auf die Literatur-Ergebnisse an.

Abbildung 5.2a beschreibt den Verlauf im Einlassbereich der Geometrie, Abbildung 5.2b den Auslassbereich. Die vorgegebene konstante Dichte am Auslassbereich hat keinen signifikanten Einfluss auf das Ergebnis. Anders ist dies für den Einlassbereich, in dem eine konstante Geschwindigkeit vorgegeben wurde. Hier fällt eine deutliche Abweichung in den ersten 30 bis 40 Gitterpunkten des Simulationsbereichs auf. Dies ist der Übergangsbereich von dem durch die Randbedingungen auferlegtem, konstantem Geschwindigkeits-Profil in der ersten Schicht und einem ausgebildeten Geschwindigkeits-Profil, das im rechteckigen Kanal aufgrund der Haftreibung am Rand entsteht. Dieser Übergang ist auch in der realen Rohrströmung vorhanden und wird hydrodynamische Einlaufänge  $L_{\text{hyd}}$  genannt [119, S. 163 ff.]. Für eine Strömung durch einen Spalt, die näherungsweise mit der durch ein rechteckiges Rohr übereinstimmt, kann sie durch einen experimentell ermittelten Zusammenhang bestimmt werden [119, S. 164]. Bei einer Reynoldszahl  $Re = 4,77 \times 10^{-5}$  ergibt sich für den betrachteten Kanal eine hydraulische Einlaufänge von 45 l.u. ( $67,5 \mu\text{m}$ ), entspricht also mit einer Abweichung von 10 % dem simulierten Ergebnis. Der so entstandenen Einschwingbereich wird im Folgenden als Vorlauf und der Ausschwingbereich als Nachlauf bezeichnet. Der Vorlauf für komplexe Strukturen stimmt nicht notwendigerweise mit dem des leeren Kanals überein, denn die Struktur hat einen zusätzlichen Einfluss auf das Profil, das sich im Einlaufbereich ausbildet. Näheres dazu wird in Kapitel 5.2.3 diskutiert.

Die unterschiedliche Ausprägung an den beiden Seiten in Abbildung 5.2 ist auf das Verhalten der Gasmoleküle zurückzuführen. Bei der Ausbreitung des Schalls beispielsweise rufen kleine relative Druck- beziehungsweise Dichteschwankungen große relative Geschwindigkeitsänderungen

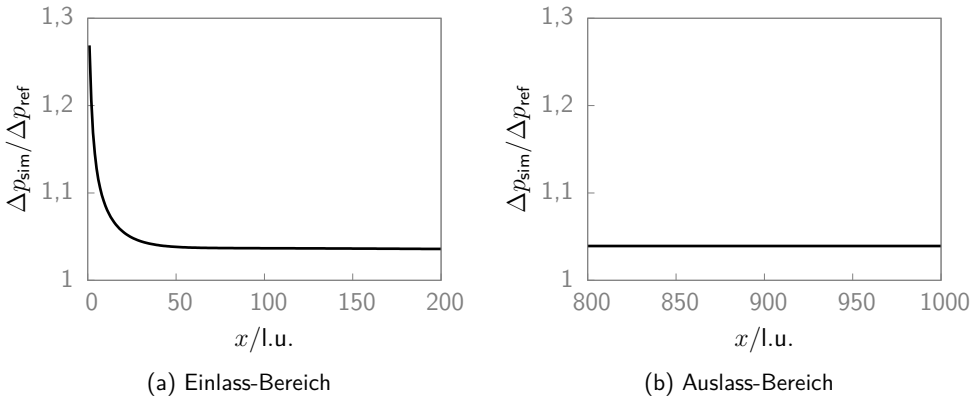


Abbildung 5.2.: Die Abbildung zeigt den Druckverlauf der Wasserstoff-Strömung durch einem leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt. Die Abmessungen des Kanals sind  $1000\text{ l.u.} \times 100\text{ l.u.} \times 100\text{ l.u.}$ . Die Mittelwerte des Druckes für die einzelnen Schichten in Flussrichtung  $x$  sind jeweils normiert auf den Referenzwert gemäß Gleichung 5.1. Es sind je  $200\text{ l.u.}$  zu sehen, links für den Einlassbereich, rechts für den Auslassbereich. Die Abbildung gilt für die Algorithmen SRT und MRT.

hervor. Daher ist der beobachtete Einfluss durch Geschwindigkeits-Randbedingungen am Einlass wesentlich größer als der Einfluss der Dichte-Randbedingungen am Auslass. Es wurden sowohl die klassische SRT- als auch die MRT-Methode angewandt. Beide ergeben dasselbe Ergebnis, welches in Abbildung 5.2 zu sehen ist. Insgesamt ist mit einer Abweichung von 3 % bis 4 % zum mit der experimentellen Formel ermittelten Ergebnis eine hinreichende Genauigkeit erreicht. Diese Validierung gelingt trotz einiger Fehlerquellen. So können die numerische Empfindlichkeit der Druckdifferenzen, Diskretisierungseffekte, der Einfluss der Rand- und Anfangsbedingungen, die genaue Wahl der Eingangsgrößen zum Beispiel für die Viskosität  $\nu$  und die Referenzgeschwindigkeit  $v_{\text{ref}}$  in Gleichung (5.1) möglicherweise das Ergebnis beeinflussen. Einen Hinweis darauf, welcher Einfluss entscheidend ist, wird die folgende Betrachtung liefern.

Als wichtige Kennzahlen für die Geometrie der Simulation werden die in Kapitel 3.6 beschriebenen Größen Permeabilität und Tortuosität des Kanals bestimmt und auf Plausibilität untersucht. Die über Gleichung (3.46) simulierten Tortuositäten sind mit  $\tau = 1,001$  sowohl für den SRT- als auch den MRT-Algorithmus nah am Referenzwert von 1. Mit einem Fehler, der im Promillebereich liegt, tritt demnach das erwartete Ergebnis ein: Keine Moleküle werden von der Fließrichtung umgelenkt. Als Kenngröße für diesen Abschnitt wird die Tortuosität daher nicht weiter betrachtet, da sie keine nennenswerten Änderungen zeigt. Um die Permeabilität zu bestimmen, wird die modellierte Druckdifferenz über die Kanallänge in die Definition der Permeabilität in Gleichung (3.45) eingesetzt. Mit den bekannten Eingangsgrößen ergibt das die Permeabilität<sup>2</sup>  $\kappa = 801,3\text{ D}$  für die Algorithmen SRT und MRT. Zum Vergleich wird die Permeabilität mit der berechneten experimentellen Druckdifferenz in Formel (5.1) ermittelt. Die so entstandene Gleichung

$$\kappa = \frac{d^2}{32 \varphi} \quad (5.2)$$

liefert den Wert  $\kappa_{\text{ref}} = 800,5\text{ D}$ , der im Weiteren als Referenzwert verwendet wird. Die Überein-

<sup>2</sup>1 Darcy =  $1\text{ D} = 9,8697 \times 10^{-13}\text{ m}^2$  [110, S.135 f.]

stimmung von Modellierung und experimenteller Formel ist demnach wesentlich besser als bei der reinen Betrachtung des normierten Druckes zu Beginn dieses Kapitels. Die Permeabilität in Gleichung (5.2) ist im Gegensatz zu Gleichung (5.1) unabhängig von den Eingangsgrößen  $\rho$ ,  $\nu$  und  $v_{\text{ref}}$ . Dies deutet darauf hin, dass die Eingangsgrößen unter den bereits diskutierten Fehlerquellen einen entscheidenden Einfluss auf den Fehler haben. Die Diskrepanz zwischen den experimentellen Eingangsparametern und denen der Simulation beträgt somit bis zu 4 %, im Einlaufbereich bis zu 10 %.

### 5.1.3. Parameter-Bestimmung

Als Modellparameter, die das physikalische Ergebnis der Simulation wesentlich beeinflussen können, werden im Folgenden der Kollisionsparameter  $\omega$  und die Gitterauflösung betrachtet. Ziel ist hierbei, einen sinnvollen Parameterbereich für diese Größen zu identifizieren und die Algorithmen MRT und SRT diesbezüglich zu vergleichen. Die Variation des Kollisionsparameters  $\omega$  wird jeweils zur numerischen Verbesserung durchgeführt, wie in Kapitel 3.4.2 beschrieben, ändert aber aus physikalischer Sicht nicht das Strömungsproblem. Das Geschwindigkeits-Profil, welches sich im leeren Kanal ausbildet, entsteht dadurch, dass in  $yz$ -Richtung Moleküle durch die Haftreibung abgebremst werden und die mittleren Moleküle sich schneller bewegen, sodass der Massenstrom in  $x$ -Richtung konstant ist. Dies ist in Abbildung 5.3 zu erkennen, in der die Geschwindigkeitsbeträge in Flussrichtung  $v_x$  für einen stationären Zustand farbig dargestellt sind<sup>3</sup>: Es stellt sich nach dem Vorlauf ein Hagen-Poiseuille-Profil [120] ein. Eine Bestätigung

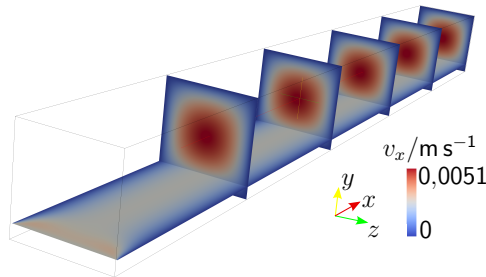


Abbildung 5.3.: Farbige Darstellung der Geschwindigkeitsbeträge in Flussrichtung  $v_x$  für eine LB-Simulation der Wasserstoff-Strömung durch ein Rohr mit rechteckigem Querschnitt. Die Abmessungen des Rohrs sind 1000 l.u.  $\times$  100 l.u.  $\times$  100 l.u. (1,5 mm  $\times$  0,15 mm  $\times$  0,15 mm).

dessen, was in Abbildung 5.3 zu sehen ist, liefert Abbildung 5.4.

Hier ist die analytische Lösung des Hagen-Poiseuille-Profiles [120, S. 120] mit verschiedenen Gitterauflösungen im Modell verglichen. Alle Geschwindigkeiten in Flussrichtung  $v_x$  in dieser Ansicht sind normiert auf die Eingangsgeschwindigkeit  $v_{x,\text{ref}}$ . Zur besseren Übersichtlichkeit ist hier ein eindimensionaler Ausschnitt in  $z$ -Richtung (vergleiche Abbildung 5.3) an der Stelle  $(\frac{1}{2}\Delta x, \frac{1}{2}\Delta y)$  dargestellt. Die Koordinaten der größeren Auflösungen sind normiert auf die entsprechenden Koordinaten in einem 1000 l.u.  $\times$  100 l.u.  $\times$  100 l.u. Gitter. Bei einer Auflösung von 1,5  $\mu\text{m}$  entspricht das einer Größe von 1,5 mm  $\times$  0,15 mm  $\times$  0,15 mm. Die Änderung der Auflösung wird jeweils so angepasst, dass die makroskopische Abmessung konstant bleibt.

<sup>3</sup>Die absolute Geschwindigkeit in dieser und allen weiteren Simulationen ist, wie in Kapitel 3.1 erklärt, numerisch optimiert und entspricht daher nicht unbedingt der jeweiligen Geschwindigkeit in Tabelle 3.4.4.



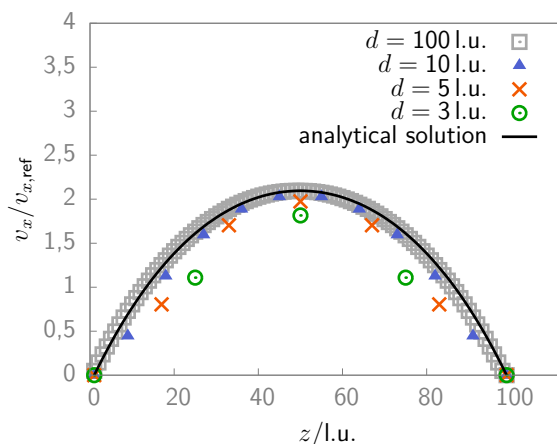


Abbildung 5.4.: Normierte Geschwindigkeit in einem Kanal mit rechteckigem Querschnitt für  $\omega = 1,2 \text{ l.u.}$ . Das Profil ist dargestellt in  $z$ -Richtung an der Stelle  $(\frac{1}{2} \Delta x, \frac{1}{2} \Delta y)$ . Aufgetragen ist die auf die Eingangsgeschwindigkeit normierte Geschwindigkeit für die verschiedene Auflösungen des Rohrquerschnitts  $d$ .

In Abbildung 5.4 ist wie auch weiterhin in diesem Abschnitt der Durchmesser des Kanals  $d$  angegeben, um auf Geometrien zu referenzieren. Die Länge der jeweiligen Kanäle ist jeweils das Zehnfache des Durchmessers, sodass die Angabe  $d = 5 \text{ l.u.}$  beispielsweise einer Auflösung von  $50 \text{ l.u.} \times 50 \text{ l.u.} \times 50 \text{ l.u.}$  entspricht.

Die Simulation in der Geometrie  $1000 \text{ l.u.} \times 1000 \text{ l.u.} \times 1000 \text{ l.u.}$  stimmt sehr genau mit der analytischen Lösung überein. Darüber hinaus ist eine Abhängigkeit von der Gitterauflösung eindeutig. Bei einer Gitterauflösung im Bereich  $5 \text{ l.u.}$  bis  $10 \text{ l.u.}$  nimmt die Höhe des Profils zunehmend ab. Obwohl der Massenstrom weiterhin konstant ist, unterscheidet sich das Ergebnis in dieser Region von den analytischen Werten. In Tabelle 5.1 werden die Punkte für die Auflösung  $30 \text{ l.u.} \times 30 \text{ l.u.} \times 30 \text{ l.u.}$  aus Abbildung 5.4 mit derselben mit dem MRT-Algorithmus durchgeführten Version verglichen.

Tabelle 5.1.: Werte der normierten Geschwindigkeiten in einem leeren Kanal mit der Abmessung  $30 \text{ l.u.} \times 30 \text{ l.u.} \times 30 \text{ l.u.}$  für die beiden Algorithmen SRT und MRT.

Algorithmus	$v_x/v_{x,\text{ref}}$ an Position		
	25 l.u.	50 l.u.	75 l.u.
SRT	1,108	1,815	1,108
MRT	1,114	1,891	1,114

Der Unterschied der beiden Algorithmen MRT und SRT beträgt weniger als 5 %. Mit der Wahl des Kollisionsparameters  $\omega = 1,2 \text{ l.u.}$  sind also selbst bei größtmöglichen Auflösungen nur geringe Unterschiede zu erkennen.

Was für den leeren Kanal gilt, muss ebenso für komplexere Strukturen berücksichtigt werden. In den Strömungssimulationen in der GDL werden enge Zwischenräume in ähnlicher Weise das Geschwindigkeits-Profil beeinflussen. Da die Analyse dieser Materialien das Ziel dieser Arbeit ist, soll die Gitterauflösung und die damit verbundene Profilhöhe eingehender studiert werden. Dazu

wird das Profil für die größt mögliche Auflösung betrachtet, um die zu untersuchenden Einflüsse zu maximieren. Der Kollisionsparameters  $\omega$ , der bisher konstant gehalten wurde, wird nun ebenfalls variiert. Wie zuvor sind die normierten Geschwindigkeiten diesmal für die Auflösung  $30\text{l.u.} \times 31\text{l.u.} \times 31\text{l.u.}$  in Abbildung 5.5 für drei verschiedene  $\omega$  an der Stelle  $(\frac{1}{2}\Delta x, \frac{1}{2}\Delta y)$  aufgetragen. In 5.5a für den SRT-Algorithmus sieht man, dass für  $\omega = 0,2\text{l.u.}$  die Profilhöhe viel zu niedrig und für  $\omega = 1,4\text{l.u.}$  im Rahmen der Diskretisierung in etwa an der analytischen Kurve verläuft und für den mittleren Wert etwas zu hoch ist.

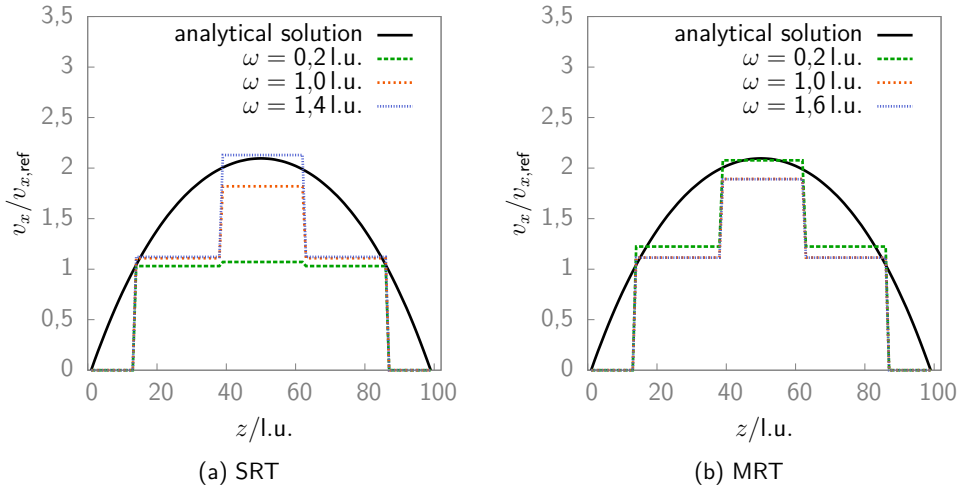


Abbildung 5.5.: Normierte Geschwindigkeit für einen Kanal mit der Auflösung  $30\text{l.u.} \times 31\text{l.u.} \times 31\text{l.u.}$  verglichen mit der analytischen Lösung für verschiedene Werte von  $\omega$ . Die Werte sind über die  $z$ -Koordinate, also senkrecht zur Fließrichtung, aufgetragen. Die Koordinaten der Simulationen sind skaliert auf einen Querschnitt der Länge  $d = 100\text{l.u.}$ . Abbildung 5.5a zeigt das Ergebnis für den SRT-, Abbildung 5.5b für den MRT-Algorithmus.

Bild 5.5b zeigt ein umgekehrtes, wenn auch nicht so ausgeprägtes Verhalten, für den MRT-Algorithmus. Je höher das Profil bei konstantem Massenstrom, desto stärker ist der Einfluss der Wandreibung auf die Simulationsgrößen. Berücksichtigt man, dass die Wandreibung der wesentliche Einfluss auf den Druckgradienten beziehungsweise die Geschwindigkeitszunahme entlang des leeren Kanals ist, ergibt sich folgendes Verhalten:

- Profil niedrig: Kaum Einfluss der Wandreibung  $\implies$  Druckabfall gering, Geschwindigkeitsanstieg gering
- Profil hoch: Starker Einfluss der Wandreibung  $\implies$  Druckabfall hoch, Geschwindigkeitsanstieg hoch

An diesem Minimalbeispiel erkennt man, dass zusätzlich zur Auflösung, wie in Abbildung 5.4 zu sehen, der Kollisionsparameter einen entscheidenden Einfluss auf die Profilhöhe hat und damit auf die Profilveränderungen von Druck und Geschwindigkeit entlang des Kanals. Während für den MRT-Algorithmus dieser Einfluss gering ist und für alle betrachteten  $\omega$  ein Profil ausgebildet wird, gilt für den SRT-Algorithmus, dass die Wahl von  $\omega$  beeinflusst, ob sich ein Profil ausbildet oder nicht.

Der aus diesen Aussagen folgende Einfluss der Profilhöhe auf die Permeabilität, die im nächsten Kapitel eine wichtige Kenngröße für die GDL-Untersuchung ist, soll analysiert werden. Diese Betrachtung soll zu einer Abschätzung für die Auflösung führen, die abhängig vom Algorithmus und vom Kollisionsparameter zufriedenstellende Ergebnisse liefert. Wie aus der Definition der Permeabilität in Gleichung (3.45) zu erkennen, sollte für die gleiche Eingangsgeschwindigkeit folgende Beziehung gelten.

- geringer Druckabfall  $\implies$  hohe Permeabilität
- hoher Druckabfall  $\implies$  geringe Permeabilität

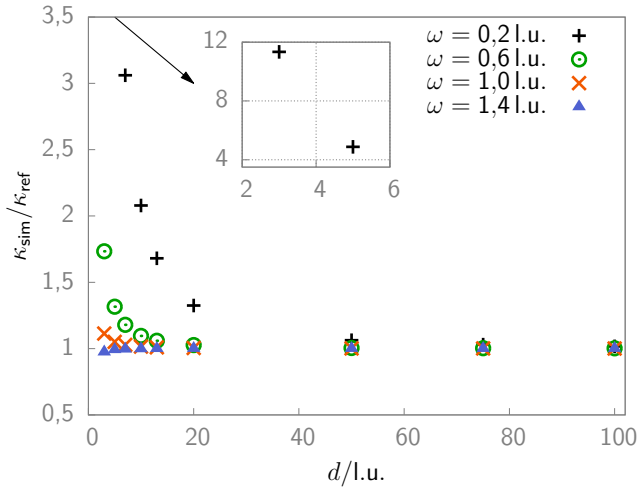
Damit ergibt sich, dass die schwache Wandreibung in Abbildung 5.5a zum Beispiel für den Wert  $\omega = 0,2$  l.u. zu einer hohen Permeabilität führen sollte. Um diese Argumentation zu überprüfen, ist in Abbildung 5.6 die Permeabilität für verschiedene Kollisionsparameter über die Gitterauflösung des Kanalquerschnitts  $d$  aufgetragen. Die Permeabilität  $\kappa_{sim}$  ist normiert auf den im vorherigen Abschnitt bestimmten Wert  $\kappa_{ref}$  für den leeren Kanal.

Die Abweichung vom Wert 1 gibt also an, wie ungenau der Algorithmus an dieser Stelle das richtige Ergebnis trifft. In Bezug auf das Beispiel  $\omega = 0,2$  l.u. wird die Vermutung bestätigt: Die berechnete Permeabilität weicht bis um das 11-fache von 1 ab. Selbst wenn so aufgelöste Bereiche nur einen kleinen Anteil an der Gesamt-Geometrie einer Simulation haben, können diese Bereiche demnach das Ergebnis sehr negativ beeinflussen. Es lässt sich der Bereich für die Auflösung ablesen, in dem die Wahl eines bestimmten  $\omega$  zu sinnvollen Ergebnissen führt. Für die SRT-Simulation lässt sich so in Abbildung 5.6a für  $\omega = 0,2$  l.u. eine Mindest-Auflösung von 50 l.u. abschätzen, eine Wahl von  $\omega = 0,2$  l.u. ist daher generell ungünstig. Für größere  $\omega$  vergrößert sich der geeignete Parameterbereich für die Auflösung. Eine Mindest-Auflösung von 5 l.u. bis 10 l.u. erscheint für diese Kollisionsparameter sinnvoll.

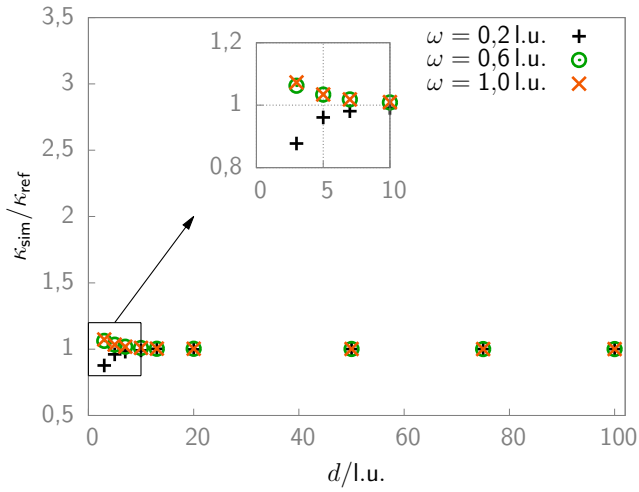
Abbildung 5.6b zeigt dieselbe Abhängigkeit für den MRT-Algorithmus. Auch hier verhält sich der Vergleich mit Abbildung 5.5 wie erwartet. Da das Profil in Abbildung 5.5b für  $\omega = 0,2$  l.u. zu hoch war, folgt eine hohe Druckdifferenz und damit eine zu niedrige Permeabilität für die entsprechende Auflösung in Abbildung 5.6b. Obwohl eine Abhängigkeit von der Auflösung für alle der gewählten  $\omega$  existiert, ist deutlich zu erkennen, dass dieser Algorithmus klare Vorteile gegenüber dem SRT-Algorithmus hat. Der Parameterbereich der Abweichung ist wesentlich geringer und die Abweichungen kleiner. So ist beispielsweise nur für einen Bereich mit einer Auflösung  $< 10$  l.u. überhaupt eine signifikante Abweichung zu erkennen und diese liegt in der Größenordnung  $< 10\%$ .

Die Abhängigkeit von  $\omega$ , die in beiden Algorithmen in unterschiedlicher Ausprägung vorhanden ist, kann durch Gleichung (3.33) verstanden werden, die besagt, dass  $\omega$  invers zur Viskosität ist. Bei kleinen  $\omega$  sollte somit die Wandreibung einen geringeren Einfluss haben. Genau dies geschieht, allerdings mit inkorrektur Intensität besonders im SRT-Algorithmus: Der Einfluss ist zu groß und die  $\omega$ -Viskosität-Abhängigkeit führt zu den gezeigten Abweichungen.

Nachdem die Mindest-Auflösung für bestimmte  $\omega$  feststeht, soll anschließend der Kollisionsparameter weiter untersucht werden. Die Abbildung 5.7 dient dazu, den genauen Parameterbereich von  $\omega$  für verschiedene Gitterauflösungen abzustecken. Es ist erneut die Permeabilität abhängig vom Kollisionsparameter  $\omega$  aufgetragen. Das geschieht für verschiedene Gitterauflösungen. Die Kurve  $d = 200$  l.u.  $\times$  20 l.u.  $\times$  20 l.u. in Abbildung 5.7a zeigt deutlich, dass der Kollisionsparameter  $> 1$  l.u. gewählt werden sollte, um unphysikalische Abweichungen zu vermeiden. Der MRT-Algorithmus ist erneut wesentlich stabiler und genauer und generell vorzuziehen. Die Abweichungen liegen selbst bei einer Auflösung von  $d = 30$  l.u.  $\times$  3 l.u.  $\times$  3 l.u. bei unter 10 % im gesamten Parameterbereich von  $\omega$ . Aus physikalischer Sicht spiegelt der MRT-Algorithmus also das dar, was man erwarten würde: Das physikalische Ergebnis ist weitestgehend unabhän-

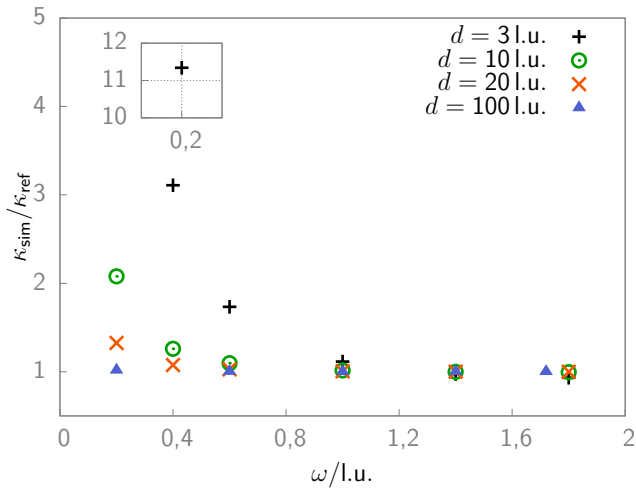


(a) SRT

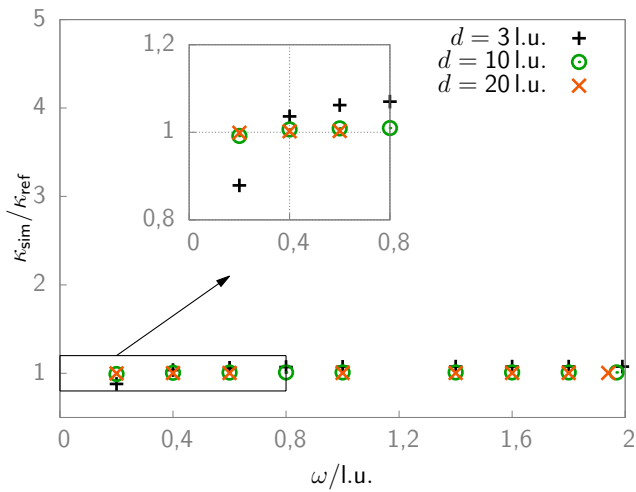


(b) MRT

Abbildung 5.6.: LB-Simulationen einer Wasserstoff-Strömung durch einen leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt. Die normierte Permeabilität ist aufgetragen über die Gitterauflösungen des Querschnitts für verschiedene Kollisionsparameter  $\omega$ . Abbildung 5.6a zeigt den Verlauf für den SRT-, Abbildung 5.6b für den MRT-Algorithmus.



(a) SRT



(b) MRT

Abbildung 5.7.: LB-Ergebnisse der Wasserstoff-Strömung durch einen leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt  $d$ . Aufgetragen ist die normierte Permeabilität über den Kollisionsparameter  $\omega$  für verschiedene Gitterauflösungen. Vergleichend sind die Simulationen mit dem SRT-Algorithmus in Abbildung 5.7a und dem MRT-Algorithmus in Abbildung 5.7b gezeigt.

gig von numerischen Anfangsparametern. Dieses Kapitel zusammengefasst heißt das für die Geometrie des leeren Kanals:

- Das Druck-Profil im leeren Kanal stimmt mit einem Fehler von 4% mit dem aus der Literatur erwarteten überein. Die Fehler für die Kennzahlen Permeabilität und Tortuosität bei geeigneter Wahl der Eingangsparameter liegen im Promillebereich.
- Im Vorlauf beziehungsweise Nachlauf für den leeren Kanal muss man die hydraulische Einlaufänge der Strömung beachten, die vom Algorithmus mit einem Fehler von 10% gut abgebildet wird. Für die hier gewählte Auflösung beträgt die Einlaufänge  $\sim 45$  l.u.. Für komplexere Geometrien wird dieser Aspekt in Kapitel 5.2.3 diskutiert.
- Grobe Auflösungen können zu großen Abweichungen im physikalischen Ergebnis führen:
  - Für SRT: Es gibt eine starke Abhängigkeit von  $\omega$ , die kleinste Porengröße sollte aber mindestens im Bereich 5 l.u. bis 10 l.u. liegen.
  - Für MRT: eine Auflösung von  $< 5$  l.u. kann zu Fehlern im einstelligen Prozentbereich führen.
- Der Kollisionsparameter  $\omega$  sollte im SRT von 1,0 l.u. bis 1,4 l.u. gewählt werden. Im Rahmen der generellen Einschränkungen für  $\omega$  in Kapitel 4 ist im MRT aus physikalischer Sicht eine freie Wahl möglich.
- Trotz der Nachteile kann die Wahl des SRT-Algorithmus aus Leistungs-Gründen von Vorteil sein. Dies muss im Einzelfall entschieden werden.

## 5.2. GDL: generelle Analyse

Zunächst wird der Simulationsaufbau für die LB-Strömungssimulation durch die GDL in Abschnitt 5.2.1 beschrieben. Anschließend sollen die numerischen und geometrischen Parameter so justiert werden, dass die LB-Simulation für ähnliche Geometrien in derselben Größenordnung verlässliche Ergebnisse liefert. Dazu wird in Kapitel 5.2.2 zunächst ein Vergleich mit dem vorherigen Kapitel gezogen. Dies geschieht erneut mit Hinblick auf die unterschiedlichen Algorithmen MRT und SRT. In Kapitel 5.2.3 werden dann die nötigen Abmessungen des Simulationsgebietes in Bezug auf die Vor- beziehungsweise Nachlauf-Breite und die GDL-Dicke abgeschätzt. Am Beispiel der GDL-Dicke wird der stochastische Einfluss der Geometrie bewertet. Alle diese Betrachtungen liefern die Grundlage für die qualitativen und quantitativen Ergebnisse für die Geometrien aus Abbildung 5.9, die in Kapitel 5.2.4 präsentiert werden.

### 5.2.1. Aufbau

Die Geometrie für die Strömungssimulation des folgenden Abschnitts ist in Abbildung 5.8 schematisch dargestellt. Im Schema der Brennstoffzelle in Abbildung 2.1 entspricht diese Geometrie dem Ausschnitt Ib. Die Geometrie ist wesentlich komplexer als im vorherigen Kapitel, da nun die GDL berücksichtigt wird. An der Anode der Abbildung 5.8 strömt Gas durch die Diffusionsschicht zur Elektrode. Als erste Näherung ist die GDL nicht komprimiert und das betrachtete Gebiet ragt nicht in den Kanal hinein. Eine typische Größenordnung der simulierten Gebiete ist  $110 \text{ l.u.} \times 500 \text{ l.u.} \times 500 \text{ l.u.}$ , was  $0,165 \text{ mm} \times 0,75 \text{ mm} \times 0,75 \text{ mm}$  entspricht. Die GDL-Dicke in Strömungsrichtung orientiert sich dabei an die Dicke einer realen GDL (circa  $200 \mu\text{m}$ ), die Stegbreite einer HT-PEFC liegt im mm-Bereich [23]. Es wird jeweils ein Vor- und

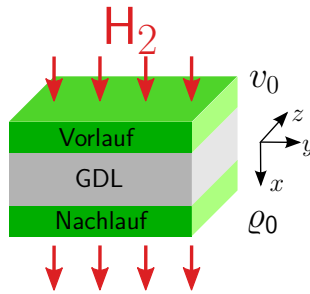


Abbildung 5.8.: Schematische Darstellung der Strömungssimulation in der GDL. Wasserstoff strömt entlang einer GDL in einem Kanal rechteckigen Querschnitts. Ein konstantes Geschwindigkeits-Profil ist am Eingang vorgegeben, eine konstante Dichte am Ausgang. Es ist jeweils ein Vorlauf beziehungsweise Nachlauf der Geometrie hinzugefügt.

ein Nachlauf hinzugefügt, alle anderen Rand- und Anfangsbedingungen entsprechen denen des leeren Kanals in Abschnitt 5.1.1. In dieser Arbeit werden drei Geometrien für die Simulationen verwendet, die im Folgenden mit  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  bezeichnet werden. Wie in Kapitel 4 beschrieben, ist die dreidimensionale Struktur aufgebaut aus einzelnen (zweidimensionalen) Schichten, die übereinandergestapelt die dreidimensionale Struktur ergeben. Ein zufällig ausgewähltes Beispiel einer dieser Schichten für jede der drei verwendeten Strukturen ist in Abbildung 5.9 gezeigt. Dort ist jeweils ein  $yz$ -Querschnitt des jeweiligen Materials zu sehen. Wie diese Materialien in der dreidimensionalen Struktur aussehen ist am Beispiel der Geometrie  $\alpha$  in Abbildung 3.1 dargestellt. Dieses Material ist die direkte Binarisierung eines realen Vlies-Materials der Firma Freudenberg FCCT SE & Co. KG. Der Querschnitt der Geometrie  $\alpha$ , in dem eine typische Simulation durchgeführt wird, ist ein zufällig gewählter Ausschnitt aus einer solchen dreidimensionalen Realstruktur, während sich die Dicke, also die Anzahl der Bilder, am realen Material orientiert.

Im Kapitel 5.3 werden generelle Betrachtungen und Parameter-Einstellungen bezogen auf LB-Simulationen in komplexen Geometrien aufgestellt und anschließend wird eine Übersicht über die Ergebnisse für die drei Strukturen in Abbildung 5.9 gegeben. Es werden zwei modellierte Geometrien betrachtet. Das Material  $\beta$  in Abbildung 5.9 basiert auf der generellen Version des Vlies-Modells für das Freudenberg-Material  $\alpha$  und wird in [18] beschrieben beziehungsweise in Kapitel 3.2 kurz erklärt. Das Modell des Papier-Typ-Materials Toray-060 [12, 13], in Abbildung 5.9 mit  $\gamma$  bezeichnet, wird ebenso in einigen Simulationen verwendet. Dieses Material ist zusätzlich mit einem Binder-Modell kombiniert, das einzelne zusammenhängende Abschnitte von Fasern so ausfüllt, dass sie komplett gefüllt sind [17]. In den Randbedingungen des Algorithmus wird zwischen Fasern, Binder und Rändern nicht unterschieden und jeweils die Bounce-Back-Bedingungen angewandt. Im Folgenden ist eine Übersicht gegeben, wie die drei verschiedenen Geometrien in dieser Arbeit eingebunden sind.

- **Geometrie  $\alpha$ :** Die Realdaten-Struktur, aus der in [6, 11] das Vlies-Modell  $\beta$  entwickelt wurde, dient als Referenz für die Modell-Validierung und ist außerdem die Grundlage für das Kanal-Steg-Szenario in Abschnitt 5.5.
- **Geometrie  $\beta$ :** Die modellierte Vlies-Struktur wird in diesem Kapitel für die meisten Untersuchungen in Bezug auf generelle Parameter-Einstellungen im LB-Algorithmus verwendet.

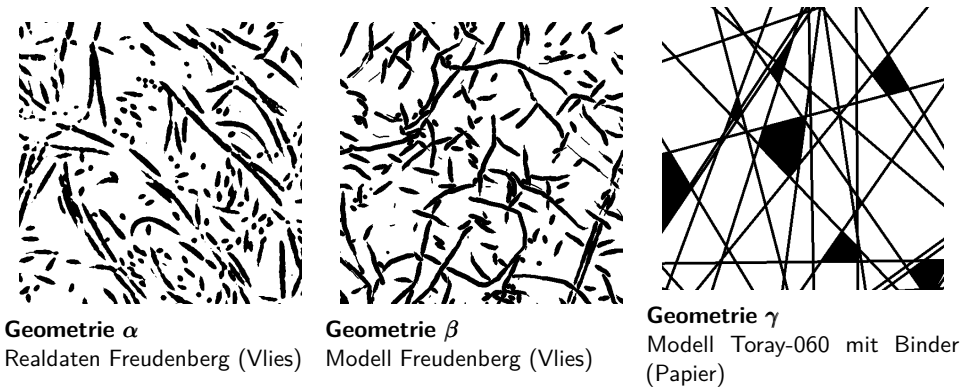


Abbildung 5.9.: Beispiele der in der Arbeit verwendeten Geometrien.

Das Geometrie-Modell beinhaltet den Parameter  $\phi$  (filling of pores), dessen Variation verschiedene Modelle (Realisierungen) erzeugt, die stochastisch den Vorgaben des Materials  $\alpha$  entsprechen<sup>4</sup>. Welche dieser Realisierungen die ist, die mit dem ursprünglichen Material aus strömungsmechanischer Sicht am besten übereinstimmt, ist damit noch nicht entschieden. Anhand der LB-Simulationen soll herausgefunden werden, wie der ursprüngliche Parameter  $\phi$  mit den durch diesen noch nicht festgelegten Strukturparametern Porenradius, Porenradienverteilung, lokale Porosität und Feststoff-Anordnung zusammenhängt. Mit dem dadurch erlangten Verständnis soll es gelingen, die Realisierung zu finden, die in ihren Strömungseigenschaften am besten den Realdaten entspricht. Gelingt es so eine Realisierung zu finden ist zudem eine Validierung des Modells in Bezug auf die Realdaten hinsichtlich der Strömungssimulation erfolgt.

Für alle weiteren modellierten Geometrien über dieses Kapitel hinaus dient die validierte Version dann als grundlegende Geometrie. Der Vorteil, mit dem GDL-Modell viele Strukturen ohne großen Aufwand zu erzeugen beziehungsweise in diesen Strömungen zu simulieren (vergleiche Kapitel 3.2), wird besonders in den mit diesem Material durchgeführten stochastischen Analysen deutlich. Verschiedene Modell-Versionen, wie am Ende dieses Kapitels untersucht, werden im Folgenden Realisierungen genannt. Die Realisierungen werden mit römischen Buchstaben durchnummeriert ( $\beta$  I,  $\beta$  II ...).

- **Geometrie  $\gamma$ :** Das modellierte Papier dient hauptsächlich als Bezugspunkt zwischen LB-Simulationen in modellierten Materialien und experimentellen Literaturwerten.

### 5.2.2. Vergleich von MRT und SRT

Der Unterschied der beiden implementierten Algorithmen MRT und SRT liegt im Einfluss des Kollisionsparameters  $\omega$ . Während dieser im SRT-Algorithmus die Frequenz vorgibt, mit der alle physikalischen Größen gegen die lokalen Gleichgewichte relaxieren, sind im MRT-Algorithmus die Relaxationsfrequenzen der unterschiedlichen Momente untereinander unabhängig. In Kapitel 3.5.2 wurde dieser Zusammenhang diskutiert.

Im letzten Abschnitt wurde der Einfluss von  $\omega$  auf eine Strömung im leeren Kanal analysiert. In diesem Abschnitt soll die Abhängigkeit der LB-Situation an der modellierten Struktur einer GDL untersucht werden, um einzuschätzen, ob sich diese Ergebnisse auf komplexere Strukturen

<sup>4</sup>Für eine ausführliche Diskussion vergleiche Kapitel 5.3.1 beziehungsweise Abbildung 5.17.



übertragen lassen. Grundsätzlich sollte die Wahl von  $\omega$ , wie in Kapitel 3.4.4 diskutiert, bei gleicher Reynoldszahl keinen Einfluss auf das physikalische Ergebnis der Simulation haben. Hinsichtlich dieser Annahme sollen die beiden Algorithmen verglichen werden.

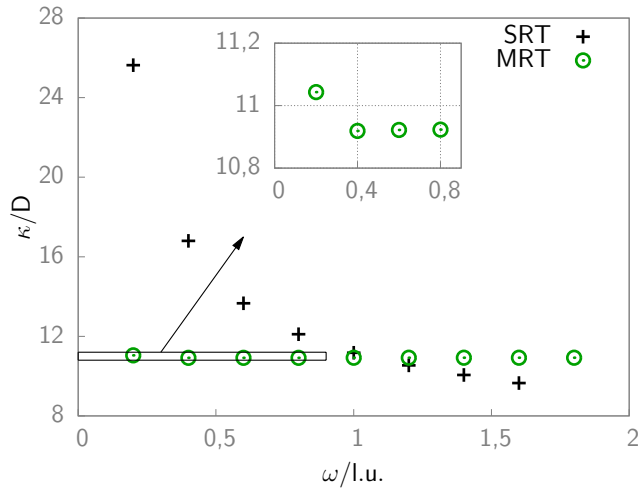
In Abbildung 5.10a wird die Abhängigkeit der Permeabilität  $\kappa$  vom Kollisionsparameter  $\omega$  für die Algorithmen SRT und MRT dargestellt. Die Geometrie der Simulation ist  $\beta$  I mit den Abmessungen 110 l.u.  $\times$  500 l.u.  $\times$  500 l.u.. Vorlauf und Nachlauf sind je 30 l.u.. Für den MRT-Algorithmus erkennt man in Abbildung 5.10a einen nahezu konstanten Verlauf mit vernachlässigbaren Abweichungen für kleinere  $\omega$ . In derselben Abbildung zeigt die Kurve für den SRT-Algorithmus eine deutliche Abhängigkeit von  $\omega$ . Im Bereich  $< 0,8$  l.u. ist diese Abweichung besonders stark mit logarithmischer Tendenz für  $\omega \rightarrow 0$  l.u.. Im Bereich  $\omega = 1,0$  l.u. bis 1,6 l.u. ist eine leichte Abhängigkeit der Permeabilität erkennbar. Für den Wert  $\omega = 1,8$  l.u. konnte mit dem SRT-Verfahren keine Konvergenz erzielt werden.

Die Abweichungen für den SRT-Algorithmus sind der Haupt-Nachteil des klassischen BGK-Verfahrens (vergleiche Kapitel 3.4.4 und [71]). Mit Hilfe der Abbildung 5.10a ist es möglich die Parameterbereiche einzugrenzen, mit denen man je nach gewünschter Genauigkeit befriedigende Ergebnisse erzielen kann, welche jedoch immer noch abhängig sind von  $\omega$ . Der Schnittpunkt mit der MRT-Kurve liegt bei  $\omega \sim 1,2$  l.u.. Wählt man für den SRT-Algorithmus einen Wert zwischen 1,0 l.u. bis 1,4 l.u., weicht man um weniger als 8 % vom Wert für den Schnittpunkt ab, sodass dieser Bereich eine gute Wahl darstellt. Eben diese Einschätzung wurde bereits in [14] veröffentlicht. Das Ergebnis zeigt, dass die in Kapitel 3.4.4 beschriebene und hier verwendete Vorgabe des Kollisionsparameters unter Anpassung der Viskosität im SRT-Algorithmus von besonderer Wichtigkeit ist. Geschieht dies nicht, wird anhand der Viskosität des strömenden Gases der Wert des Kollisionsparameters über Gleichung (3.33) ein Wert für  $\omega$  berechnet, der die beschriebenen Probleme mitbringt.

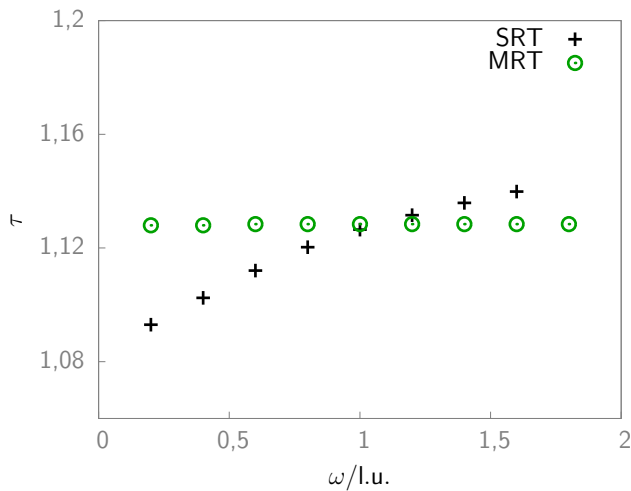
Das GDL-Material ist eine Ansammlung von Fasern. Während die Porenräume nicht einfach zu definieren sind, ist es unstrittig, dass der Gasfluss sowohl kleine als auch größere Porenräume passieren muss. Obwohl diese Porenräume natürlich komplexer sind als einfache Kanäle mit rechteckigem Querschnitt, ist ein prinzipiell gleiches Verhalten der Strömung im Vergleich des leeren Kanals mit der GDL-Struktur denkbar. Diese Analogie bestätigt sich in der Gegenüberstellung der beiden Abbildungen 5.10a und 5.7a.

Der SRT-Algorithmus zeigt für die Gitterauflösungen 3 l.u.  $\times$  3 l.u. ( $\sim 2,5 \mu\text{m}$ ) eine ähnliche Abhängigkeit von  $\omega$  wie in der komplexen GDL-Struktur. Wie in Kapitel 3.1 diskutiert, ist der mittlere Porenradius  $\sim 5 \mu\text{m}$ . Die kleinsten Poren liegen etwa bei  $1 \mu\text{m}$ , die größten bei etwa  $20 \mu\text{m}$ . Daraus lässt sich in Analogie zur Auflösung im leeren Kanal ableiten, dass die geringe Auflösung der Poren unterhalb des mittleren Porenradius relevant sind für die Abweichungen, die in Abbildung 5.10a für kleine  $\omega$  zu sehen sind.

Für den MRT-Algorithmus sollte man, wie in Abbildung 5.10a dargestellt, lediglich auf Werte unter  $\omega = 0,4$  l.u. verzichten. Die geringen Abweichungen für die Auflösung 3 l.u.  $\times$  3 l.u. zeigen nur unwesentliche Auswirkungen auf das Gesamtergebnis und sind für die hier verwendeten Geometrien vernachlässigbar. Wie in Kapitel 4 bereits bezogen auf die Konvergenzgeschwindigkeit des Algorithmus diskutiert, ergibt sich, dass für die Wahl von  $\omega$  der Bereich von 1,0 l.u. bis 1,4 l.u. sowohl für den SRT- als auch für MRT-Algorithmus numerisch günstig ist. In Abbildung 5.10b ist zu sehen, dass diese Aussagen auch auf die Tortuosität des Materials zutreffen. Im Vergleich der beiden Bilder erkennt man sofort, dass die Permeabilität wesentlich empfindlicher auf Änderungen im Algorithmus reagiert. Während die Tortuosität in Abbildung 5.10b zwischen 0,2 l.u. um weniger als 5 % steigt, fällt die Permeabilität in Abbildung 5.10a um 60 % in dieser Spanne. Aus diesem Grund werden in Folge hauptsächlich Betrachtungen für die Permeabilität angestellt und die Tortuosität dort hinzugezogen, wo es sinnvoll erscheint. Bei den eben vorgelegten Argumenten in diesem Abschnitt wurde der stochastische Einfluss der



(a) Permeabilität



(b) Tortuosität

Abbildung 5.10.: Kollisionsparameter-Abhängigkeit der Kennzahlen im Vlies-Material  $\beta$  I mit den Abmessungen  $110 l.u. \times 500 l.u. \times 500 l.u.$  für die beiden Algorithmen SRT und MRT. Der Gitterabstand ist von  $dx = 1,75 l.u.$  bei einem Vorlauf und Nachlauf von je  $30 l.u.$ . In Abbildung 5.10a ist die Permeabilität, in Abbildung 5.10b die Tortuosität zu sehen.

Geometrie außer Acht gelassen. Dass die relativen Begründungen, wie hier geschehen, für dieselbe Geometrie dennoch richtig sind liegt nahe, muss aber zumindest stichprobenartig begründet werden. Aus diesem Grunde findet eine stochastische Analyse des MRT/SRT-Vergleichs in Abschnitt 5.4.2 statt. Da zunächst weitere Grundlagen für diese Diskussion, insbesondere die Skalierung des GDL-Materials, erarbeitet werden müssen, erfolgt diese Analyse erst am Ende dieses Kapitel 5. Von dieser Analyse abgesehen, werden die weiteren Simulationen, wenn nicht gesondert gekennzeichnet, ausschließlich mit dem MRT-Algorithmus durchgeführt, um dessen Vorteile zu nutzen.

### 5.2.3. Abmessungen des Simulationsgebietes

Der Vorlauf beziehungsweise Nachlauf in der LB-Simulation wird verwendet, um, wie in Kapitel 5.1.2 für einen leeren Kanal beschrieben, die Einschwingbereiche der Strömung zu kompensieren. In Abbildung 5.11 sind die Geschwindigkeiten für einen typischen Querschnitt einer Vlies-Simulation gezeigt. Von einer Geschwindigkeits-Randbedingung in einem leeren Kanal,

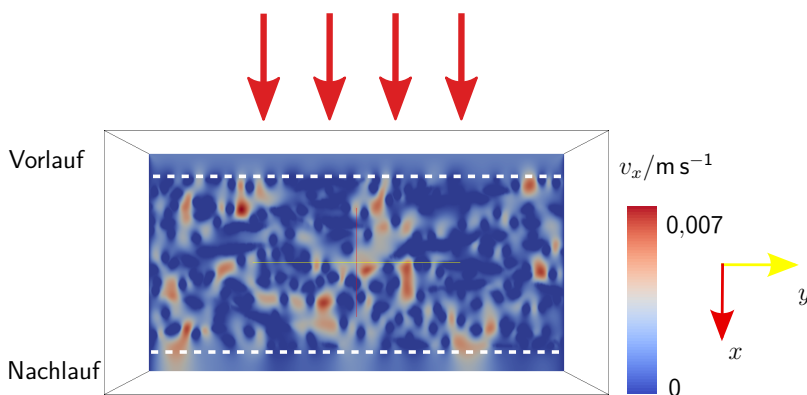


Abbildung 5.11.: Typischer  $xy$ -Querschnitt einer Strömungssimulation, der die Geschwindigkeitsbeträge in Flussrichtung  $v_x$  für das Vlies-Modell  $\beta$  II zeigt.

etwa dem Vorlauf ohne GDL, würde man einen Einschwingbereich erwarten, in dem sich ein Hagen-Poiseuille-Profil ausbildet (vergleiche Kapitel 5.1.3). Dies ist überlagert von dem Einfluss der GDL, die die Strömung in ihre Struktur zwingt. Im Vorlauf und Nachlauf der Abbildung 5.11 erkennt man deutlich diesen Einfluss der GDL-Struktur. Durch die Druck-Randbedingungen am Nachlauf entsteht ein inhomogenes Geschwindigkeits-Profil, was in der Brennstoffzelle einer inhomogenen Versorgung der Elektrode entspricht. Qualitativ ist hier demnach zu erkennen, warum der Vorlauf beziehungsweise Nachlauf in Kapitel 5.1.2 eingeführt wurde. Die notwendige Breite dieses Bereichs hängt von den gewählten Randbedingungen und der durchströmten Geometrie ab. Vor- und Nachlauf werden gleich groß gewählt. Die empfindlichere Seite ist die, an der Geschwindigkeits-Randbedingungen angelegt sind, da, wie hier erneut zu sehen, die relativen Geschwindigkeits-Schwankungen generell höher sind als die relativen Dichteschwankungen. In Abbildung 5.12 sind die Permeabilitäten der GDL-Struktur  $\beta$  I für verschiedene Vorlauf-Breiten zu sehen. Die GDL hat eine Länge von 110 l.u. mit dem Querschnitt 500 l.u. bei einem Gitterabstand von  $1,75 \mu\text{m}$  und die Vorlauf-/Nachlauf-Dicke wurde von 10 l.u. bis 50 l.u. variiert. Die Permeabilität als Kenngröße des Materials sollte nicht vom gewählten Vorlauf abhängen. Dennoch sieht man in Abbildung 5.12, dass die Permeabilität im betrachteten Bereich um 2 % bis 3 % schwankt und mit zunehmender Breite auf einen konstanten Wert

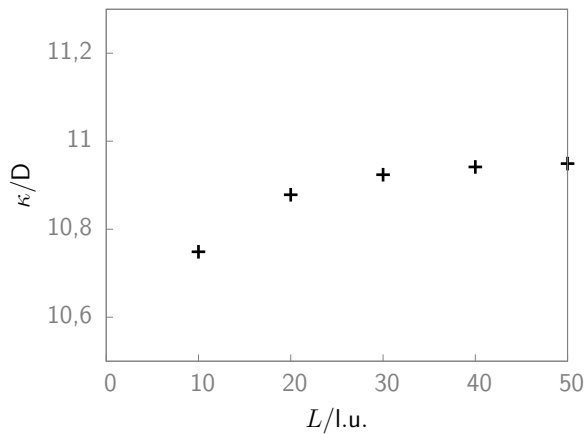


Abbildung 5.12.: Absolute Permeabilität der GDL  $\beta$  I mit der Größe 110 l.u.  $\times$  500 l.u.  $\times$  500 l.u. ( $193 \mu\text{m} \times 875 \mu\text{m} \times 875 \mu\text{m}$ ) für verschiedene Vor- und Nachlauf-Breiten bei einem Gitterabstand von  $1,75 \mu\text{m}$ .

zuläuft. Anhand dieser Simulationen wird im Folgenden einen Vor- und Nachlauf von mindestens je 30 l.u. für vergleichbare Probleme gewählt. So kann verhindert werden, dass sich der Einfluss der Randbedingungen auf das Profil in der GDL auswirkt. Ein Strömungsprofil kann sich entlang des Vorlaufs entsprechend der GDL-Struktur einstellen. Dies entspricht in etwa den Ergebnissen für den leeren Kanal: In Kapitel 5.1.2 wurde für dort die hydraulische Einlaufänge von ( $67,5 \mu\text{m}$ ) bestimmt und liegt damit in der Größenordnung des Vorlaufs für die GDL-Struktur ( $70 \mu\text{m}$  für 40 l.u.).

Ein poröses Material wie die GDL setzt sich zusammen aus vielen stochastisch verteilten Poren. Die Eigenschaften des Materials sind nicht eindeutig und hängen von der betrachteten Größe ab. Für einen Ausschnitt im Bereich des Porendurchmessers ist dies sofort ersichtlich, denn die unterschiedlichen Porenformen führen zu unterschiedlichen Kenngrößen in der Strömungssimulation. Wählt man die Abmessung groß genug, mitteln sich die Einflüsse der einzelnen Poren heraus und man erhält eindeutige Kenngrößen. Das Gebiet, welches die Mindest-Größe für diese Bedingung hat, wird Repräsentatives Elementarvolumen (REV) genannt [110, S. 20]. Das REV ist materialabhängig und soll in diesem Abschnitt für die Fließrichtung des Vlies-Materials (Geometrien  $\alpha$ ,  $\beta$ ), also auf eine Dimension beschränkt, bestimmt werden. Die Aussagen werden aus Simulationen einer Realisierung des Materials  $\beta$  abgeleitet, werden aber, aufgrund der geringen Unterschiede zu den im Weiteren betrachteten Realisierungen des Materials  $\beta$  sowie den Realdaten  $\alpha$ , für diese übernommen. Da das Material  $\gamma$  in dieser Arbeit nur vereinzelt zum Vergleich herangezogen wird, wird sein REV nicht weiter diskutiert. Einblicke gibt die stochastische Analyse am Ende dieses Abschnittes.

Es wird für die GDL-Dicke eine ähnliche Betrachtung wie für den Vorlauf durchgeführt, um das REV in Strömungsrichtung zu bestimmen: Durch die Variation der GDL-Dicke soll herausgefunden werden, nach wie vielen Ebenen die Permeabilität einen konstanten Wert erreicht. Zwar ist die Permeabilität per Definition eine Materialkonstante, allerdings erst wenn der betrachtete Ausschnitt einem REV entspricht. Es muss eine bestimmte Anzahl an Ebenen, im Sinne des Stapel-Modells, entlang der betrachteten Dimension vorhanden sein, sodass genügend Struktur in Betracht gezogen wird, dass die ergebende Kennzahl ein Mittelwert darstellt und nicht die Beschreibung einzelner Poren. Die Frage, wie viele Poren im Mittel der gesuchten Zahl der

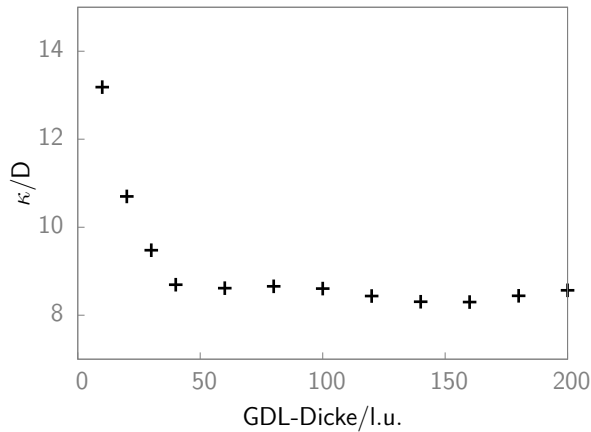


Abbildung 5.13.: Absolute Permeabilität der GDL  $\beta$  II in einem Querschnitt von  $600 \text{ l.u.} \times 600 \text{ l.u.}$  ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) bei einer Auflösung von  $0,876 \mu\text{m}$  für verschiedene Schicktdicken. Vor- und Nachlauf betragen je  $30 \text{ l.u.}$  ( $26 \mu\text{m}$ ).

Ebenen entsprechen, soll erst im Kapitel 5.3.2 unter Kenntnis der Porenstruktur diskutiert werden.

In einem Querschnitt von  $600 \text{ l.u.} \times 600 \text{ l.u.}$  ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) wurde eine Strömungssimulation im Material  $\beta$  II durchgeführt. Der Vor- und Nachlauf betrug je  $30 \text{ l.u.}$  ( $26 \mu\text{m}$ ). In Abbildung 5.13 ist das Ergebnis gezeigt. Die maximale GDL-Dicke entspricht bei einer Auflösung von  $0,876 \mu\text{m}$  einer makroskopischen Dicke von circa  $175 \mu\text{m}$ , was sich etwa in dem Bereich realer GDL-Dicken befindet (circa  $200 \mu\text{m}$ ).

Es stellt sich eine konstante Permeabilität ab einer Schicktdicke von circa  $40 \text{ l.u.}$  ( $35 \mu\text{m}$ ) ein, eine Mindest-Dicke, die in dieser Arbeit bei jeder Simulation erreicht wird. Für den Bereich  $< 40 \text{ l.u.}$  entspricht der Ausschnitt keinem REV in Fließrichtung, sodass große Abweichungen auftreten. Da diese Aussagen materialabhängig sind, ist das Ergebnis auf das Vlies-Material beschränkt. In Abbildung 5.13 erkennt man für den Bereich  $> 40 \text{ l.u.}$  geringe Fluktuationen der Permeabilität. Diese zeigt, dass weiterhin stochastische Einflüsse bestehen und der betrachtete Bereich strenggenommen insgesamt kein REV darstellt. Da die Schwankungen im gesamten Verlauf gleich sind, ist anzunehmen, dass die nicht variierten Dimensionen des Querschnitts in  $yz$ -Richtung dafür verantwortlich sind. Der Durchmesser  $d$  der Geometrie in  $yz$ -Richtung ist um den Faktor 2 bis 4 größer als die GDL-Dicke. Es wird auf eine ähnliche Analyse, die Größe zu variieren, verzichtet. Stattdessen werden Strömungssimulationen in verschiedenen Geometrien einer Realisierung mit demselben Querschnitt durchgeführt, um den Einfluss des Querschnitts genauer einschätzen zu können.

Es sollen verschiedene Geometrien der Materialien  $\beta$  II und  $\gamma$  verglichen werden. Hier erkennt man klar den Vorteil mit modellierten Geometrien zu rechnen, da es in diesem Fall mit wesentlich weniger Aufwand verbunden ist, stochastisch äquivalente Geometrien zu erzeugen. Sie können innerhalb kurzer Zeit am Computer generiert und müssen nicht aus Realdaten generiert beziehungsweise experimentell neu bestimmt werden.

In Abbildung 5.14 ist für die Simulation aus Abbildung 5.13 mit einer GDL-Dicke von  $120 \text{ l.u.}$  ( $180 \mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von  $1,5 \mu\text{m}$  die Permeabilität für verschiedene stochastisch äquivalente Geometrien  $\beta$  II als Histogramm aufgetragen und mit dem Material  $\gamma$  mit der Dicke  $190 \text{ l.u.}$  ( $175 \mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von  $0,876 \mu\text{m}$  verglichen. Der Quer-

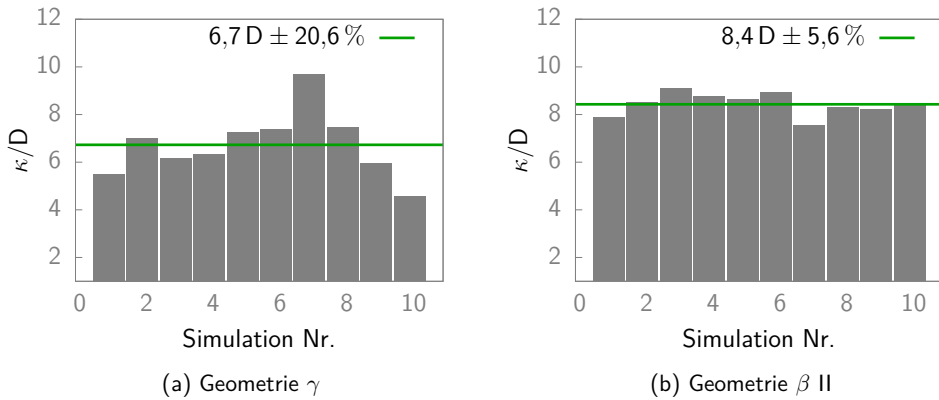


Abbildung 5.14.: Histogramm der Permeabilitäten des jeweiligen Materials. In Abbildung 5.14a beträgt die GDL-Dicke 120 l.u. ( $180 \mu\text{m}$ ) mit  $1,5 \mu\text{m}$  und in Abbildung 5.14b beträgt sie 200 l.u. ( $175 \mu\text{m}$ ) bei einer Auflösung von  $0,876 \mu\text{m}$ . Der Querschnitt ist 512 l.u.  $\times$  512 l.u. ( $768 \mu\text{m} \times 768 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14a und 600 l.u.  $\times$  600 l.u. ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14b. Die grüne Linie ist der Mittelwert.

schnitt ist 512 l.u.  $\times$  512 l.u. ( $768 \mu\text{m} \times 768 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14a und 600 l.u.  $\times$  600 l.u. ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14b. Die grüne Linie gibt den Mittelwert an. Als Maß für die Streuung ist jeweils die relative Standardabweichung (Variationskoeffizient) mit angegeben. Es wird der relative Wert angegeben, um die Streuung der Tortuosität und der Permeabilität vergleichen zu können. Bei einer Streuung von 20,6 % für die betrachtete Geometrie  $\gamma$  kann der absolute Wert einer einzelnen Simulation stark vom Mittelwert abweichen.

Vergleicht man die stochastische Schwankung für die Geometrien  $\beta$  II und  $\gamma$  in Abbildung 5.14, fällt auf, dass die Streuung des modellierten Vlies-Materials mit 5,6 % wesentlich geringer ist als die Streuung des Papier-Materials. Wie in der Beispielabbildung 5.9 gezeigt, enthält das Papier-Material zusätzlich zur reinen Faserstruktur einen Binder, der mitunter großflächige Bereiche überdeckt. Diese Bereiche können die Strömung für einzelne Simulationen so ablenken, dass eine deutliche Abweichung von einer reinen Faserstruktur entsteht und die Streuung des Mittelwertes dementsprechend hoch ist. In der Abbildung 5.15 ist nach dem gleichen Prinzip die Tortuosität für das Papier- und das Vlies-Material in einem Histogramm aufgetragen. Auch hier ist die Streuung beim Papier mit 3,2 % wesentlich größer als beim Vlies (0,5 %). Zudem ist abermals zu erkennen, dass die Kennzahl Tortuosität wesentlich unempfindlicher ist als die Permeabilität in Bezug auf Änderungen an den Simulationsbedingungen. Die großen Schwankungen der Kennzahlen lassen den Schluss zu, dass für das Material  $\gamma$  kein REV in  $yz$ -Richtung angenommen werden darf. Für das Material  $\beta$  II hingegen sind die stochastischen Schwankungen so gering, dass diese Annahme gerechtfertigt ist, wie bereits in der Diskussion der GDL-Dicke vermutet. Zur Steigerung der Genauigkeit kann auch hier eine stochastische Betrachtung sinnvoll sein. Dies gilt vor allem in der absoluten Berechnung der Kennzahlen, aber auch in wichtigen generellen Betrachtungen bei GDL-Strömungssimulationen, in denen es hauptsächlich um relative Abhängigkeiten geht. Speziell wird daher in Kapitel 5.3 die Gitter-Skalierung der GDL und der Vergleich des SRT- mit dem MRT-Algorithmus auf stochastische Einflüsse untersucht. Im nächsten Kapitel folgt eine ausführliche Betrachtung der absoluten Kennzahlen der verschiedenen Materialien.

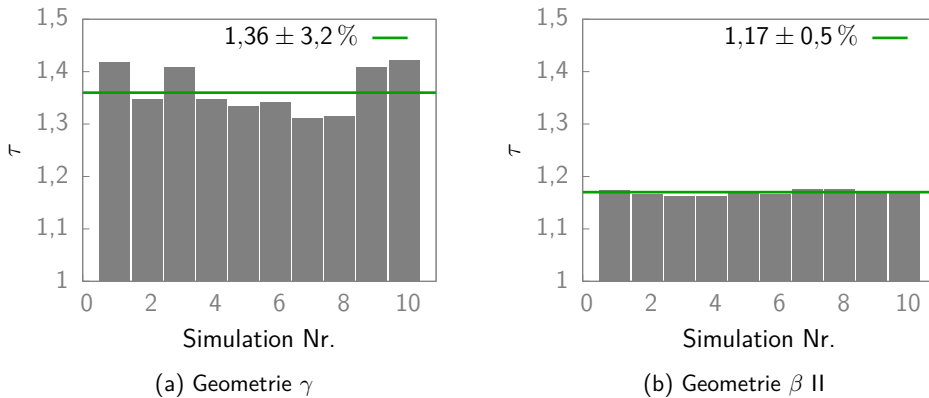


Abbildung 5.15.: Histogramm der Tortuositäten für die verschiedenen Simulationen des jeweiligen Materials. Die grüne Linie gibt den Mittelwert an. In Abbildung 5.15a beträgt die GDL-Dicke 120 l.u. ( $180 \mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von  $1,5 \mu\text{m}$  und in Abbildung 5.15b beträgt sie 200 l.u. ( $175 \mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von  $0,876 \mu\text{m}$ . Der Querschnitt ist  $512 \text{ l.u.} \times 512 \text{ l.u.}$  ( $768 \mu\text{m} \times 768 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.15a und  $600 \text{ l.u.} \times 600 \text{ l.u.}$  ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.15b.

## 5.2.4. Analyse verschiedener GDLs

Im vorherigen Kapitel wurden die REVs und die Einschwingbereiche der hier verwendeten GDL-Materialien diskutiert. Für alle weiteren Simulationen wird eine Dicke von mindestens 40 l.u. und ein Vor-/Nachlauf von mindestens je 30 l.u. bei Auflösungen von  $0,876 \mu\text{m}$  für den Vlies-Typ und  $1,5 \mu\text{m}$  für den Papier-Typ berücksichtigt. In Abbildung 5.16 ist eine typische LB-Strömungssimulation im Vlies-Modell (Geometrie  $\beta$  II) gezeigt.

Um einen Eindruck zu bekommen, wie die Strömung im Innern der GDL aussieht, sind die absoluten Geschwindigkeiten in der Haupt-Fließrichtung  $v_x$  für ausgewählte Ebenen abgebildet. Die Schwankungen der Dichte sind relativ gesehen klein gegenüber den Schwankungen der Geschwindigkeit (siehe Kapitel 5.1.2), daher entspricht die Geschwindigkeit in Flussrichtung ungefähr dem Massenstrom im System. Die verdeckte Ebene entspricht dem Ende der GDL an der Elektrodenseite (vergleiche Abbildung 2.1). Die stochastische Struktur der GDL ist in Abbildung 5.16 zu erkennen. In der Abbildung sind zwei Bereiche mit Umrandungen gekennzeichnet:

- **gelber Kasten:** In diesem Bereich ist die Geschwindigkeit in Strömungsrichtung am oberen Rand des Spektrums. Es befinden sich relativ wenige Fasern in dieser Gegend und die Elektrode wird ungleichmäßig mit Gas versorgt, da hier mehr Gas umgesetzt wird als im Durchschnitt.
- **roter Kasten:** Das Gas in Haupt-Fließrichtung wird durch eine Ansammlung an Fasern blockiert. Die Versorgung der Elektrode ist nicht mehr gleichmäßig.

Die unter- beziehungsweise überversorgten Bereiche sind stochastisch verteilt und damit individuell für jede Simulation. In der realen Brennstoffzelle befindet sich zudem oft noch eine MPL (vergleiche Kapitel 3.3.1) zwischen GDL und Elektrode, die den Fluss des Gases bis zu einem bestimmten Grad homogenisiert. Diese Schicht soll aber nicht Bestandteil dieser Arbeit sein. Nichtsdestotrotz sind Faseransammlungen Widerstände, die im direkten Weg des Gases

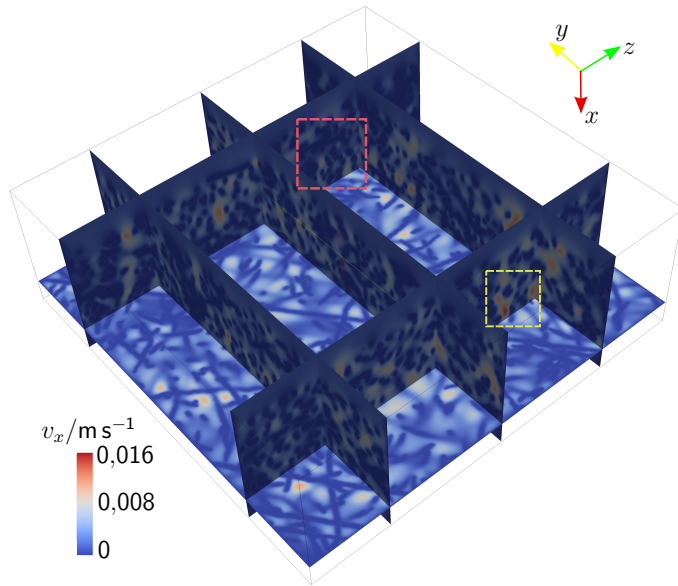


Abbildung 5.16.: Geschwindigkeiten  $v_x$  für ausgewählte Bereiche einer LB-Simulation in der Geometrie  $\beta$  II. Der rote Kasten weist auf ein schlecht durchströmtes Gebiet, der gelbe Kasten deutet auf ein starke Strömung jeweils relativ zur mittleren Strömungsgeschwindigkeit hin.

stehen und einen Einfluss auf die Dichte- und Geschwindigkeitsverteilungen im Simulationsgebiet haben.

Ein Vergleich für LB-Strömungssimulationen in allen GDL-Materialien in dieser Arbeit ist in Tabelle 5.2 aufgelistet. Die Einheiten für die Permeabilität sind in Darcy angegeben. Der Wert, um die die Literatur-Materialien komprimiert sind, ist jeweils als tiefgestellter Index gekennzeichnet. Die Strömungsrichtung ist ein weiterer wichtiger Einfluss auf die betrachteten Kennzahlen. In der Brennstoffzelle bezeichnet through-plane die Hauptströmungsrichtung vom Kanal in Richtung Elektrode. Generell beziehen sich die angestellten Untersuchungen hauptsächlich auf diese Richtung, können aber in gleicher Weise übertragen werden auf die Strömung des Gases in-plane, was in einzelnen Simulationen für die Geometrien in Tabelle 5.2 auch durchgeführt wurde. In through-plane Richtung wurden für einige der Materialien mehrere Simulationen für dieselben Abmessungen mit stochastisch äquivalenten Geometrien durchgeführt. Bei diesen Simulationen ist jeweils der Mittelwert und die relative Standardabweichung  $\sigma$  angegeben. Eine generelle Abhängigkeit vom Winkel der Anströmung soll hier nicht untersucht werden.

Zunächst soll die Permeabilität diskutiert werden. Als weit verbreitetes Material in Brennstoffzellen ist der untersuchte Papier-Typ (Toray-060) Gegenstand vieler Experimente. So wurden diverse Permeabilitätsmessungen durchgeführt, wie zum Beispiel in [111] zusammengetragen. Der Vergleich dieser Messungen mit den Ergebnissen der LB-Strömungssimulation ist somit eine wichtige Plausibilitäts-Überprüfung der verwendeten Methode. Dabei ist zu beachten, dass Ergebnisse von Permeabilitäts-Messungen einer breiten Streuung unterliegen und Gruppen mit unterschiedlichen Messanordnungen signifikant unterschiedliche Ergebnisse erhalten. In Tabelle 5.2 sind daher zwei Literatur-Referenzen aufgelistet, deren Werte deutliche Unterschiede aufweisen und deren Konfidenzintervalle sich nicht überdecken. Zudem muss berücksichtigt



Tabelle 5.2.: Übersicht der Ergebnisse für die LB-Strömungssimulationen in verschiedenen Materialien und Vergleich mit Literaturwerten. Alle Werte mit relativen Standardabweichungen sind Mittelwerte von mehreren Simulationen einer Realisierung. Der Wert, um die die Literatur-Materialien komprimiert sind, ist jeweils als tiefgestellter Index notiert. Die Einheiten der Permeabilität sind in Darcy angegeben.

GDL-Typ		$\kappa$	$\sigma_\kappa$	$\kappa_{lit}$	$\tau$	$\sigma_\tau$	$\tau_{lit}$
		D	%	D		%	
Papier in-plane	$\gamma$	13,0		5 – 10 <sub>75%</sub> [121] 12,8 <sub>16%</sub> [111]	1,12		
Papier through-plane	$\gamma$	6,7	$\pm 20,6$	5 – 10 <sub>0%</sub> [121] 21,1 <sub>6%</sub> [111]	1,37	$\pm 3,2$	1,2 [122]
Vlies in-plane	$\beta$ I	11,7			1,14		
	$\beta$ II	34,7			1,14		
	$\alpha$	30,2			1,14		
Vlies through-plane	$\beta$ I	9,3	$\pm 8,3$		1,17	$\pm 0,4$	
	$\beta$ II	8,4	$\pm 5,6$		1,17	$\pm 0,5$	
	$\alpha$	8,0			1,19		

werden, dass bei diesen Werten die GDL häufig produktions- oder versuchsbedingt in einer komprimierten Version vorliegt und somit nicht genau dem (unkomprimierten) modellierten Material entspricht. Der Kompressionsgrad ist jeweils an den Literaturwerten als Index gekennzeichnet, wie in der ersten Zeile der Tabelle bei der in-plane Simulation des Papier-Materials zu sehen. Eine größere Komprimierung desselben Materials führt zu einer Verdichtung der Fasern und somit zu einer größeren Druckdifferenz zwischen Einlass und Auslass für ein anströmendes Gas. Dementsprechend führt dies zu einer Verringerung der Permeabilität. Der Unterschied der beiden Literaturwerte ist dahingehend plausibel, da das höher komprimierte Material (um 75 %) eine geringere Permeabilität aufweist. Das simulierte Material ist unkomprimiert, so würde man einen leicht höheren Wert als den Literaturwert 12,8D erwarten. Das Ergebnis 13,0D erfüllt diese Bedingung. Hier ist allerdings anzumerken, dass für diese Simulation keine stochastischen Einflüsse untersucht wurden und außerdem das Binder-Modell in einer genaueren Analyse mit berücksichtigt werden müsste.

Durch das Modell kommt es vor, dass relativ große Binder-Schranken das anströmende Gas vom direkten Weg ablenken und somit die Permeabilität kleiner wird. Sind ganze Bereiche besonders in den ersten und letzten Schichten der GDL abgedeckt, werden die Unterschiede der einzelnen Simulationen deutlich und damit wird die Standardabweichung des Mittelwerts erhöht. An dieser Stelle sei auf die ausführliche Diskussion verschiedener Bindermodelle im Papier-Material in [17] verwiesen. Der Mittelwert der through-plane Permeabilität liegt mit 6,7D genau im Bereich der gefundenen Literaturwerte für das unkomprimierte Material (2. Zeile, oberer Literaturwert). Der zweite Literaturwert des mit 6 % komprimierten Materials weicht mit 21,1D deutlich ab, sowohl vom Simulationsergebnis als auch vom ersten Literaturwert. Aufgrund des starken Unterschiedes der beiden Literaturwerte ist es nicht möglich zu entscheiden, welcher vorzuziehen ist beziehungsweise eine eindeutige Validierung mit einem Material vorzunehmen. Lässt man dies außer Acht, zeigt der Vergleich von Literaturdaten und Modell jedoch insgesamt, dass die Methode Ergebnisse liefert, die in der Größenordnung gängiger Experimente liegen beziehungsweise mit diesen Werten übereinstimmen.

Somit eignet sich das Papier-Material als Orientierung für das modellierte Vlies-Material  $\beta$ , für das die Ergebnisse im unteren Teil der Tabelle gezeigt sind. Im direkten Vergleich mit den beiden Versionen des Vlies-Modells sind die Permeabilitäts-Werte through-plane erhöht, aber in derselben Größenordnung. Diese Abweichung überrascht nicht. Einerseits ist im Vlies-Modell kein Binder enthalten, andererseits sind die Faserstrukturen - vergleiche Abbildung 5.9 - deutlich verschieden.

Für die in-plane Richtung der Vlies-Geometrie weisen die Ergebnisse mit 11,7D ( $\beta$  I) beziehungsweise 34,7D ( $\beta$  II) deutliche Unterschiede auf, die in dieser Größenordnung nicht durch stochastische Schwankungen verursacht werden können. Obwohl die Faserstruktur dieser beiden Versionen übereinstimmt und kein Binder-Modell wie im Papier-Material angewendet wurde, sind die Unterschiede sehr groß. Die in-plane Analyse soll allerdings hier nicht behandelt werden. Als wichtige Referenz für die Strömungen im simulierten Material ist die Simulation in den Realdaten (Material  $\alpha$ ), aus der das Modell für die stochastischen Geometrien generiert wurde, hinzuzuziehen. Dieser Referenzwert unterliegt naturgemäß auch stochastischen Schwankungen, die für die einzeln vorliegenden Tomogramme nicht ermittelt werden können und daher näherungsweise als gegebener Referenzwert angenommen werden. In Tabelle 5.2 ist deutlich gezeigt, dass die Version II des modellierten Materials insbesondere in-plane bessere Ergebnisse liefert. In der Diskussion von möglichen Modell-Versionen im folgenden Kapitel wären diese Parameter-Einstellungen demnach vorzuziehen.

Die simulierte Tortuosität der modellierten Materialien ist in der letzten Spalte der Tabelle 5.2 angegeben. In Messungen hängt die Tortuosität immer mit anderen Eingangsgrößen wie der Strömungsgeschwindigkeit zusammen und ist keine eindeutige Struktur-Kenngröße zur Charakterisierung von Kennzahlen. Dennoch liefert ihre Kenntnis für den jeweiligen Betriebsfall ebenfalls wichtige Informationen über das Material. Mit der Kozeny-Carman-Gleichung kann für poröse Medien die Permeabilität und die Tortuosität in Beziehung gesetzt werden. Generell beschreibt sie einen quadratisch inversen Zusammenhang zwischen Permeabilität und Tortuosität:  $\kappa \sim 1/\tau^2$  [123]. Dieser Zusammenhang ist abhängig vom Material, was qualitative Vergleiche in Tabelle 5.2 schwierig macht. Der Trend dieser Aussage aber ist zum Beispiel im through-plane Vergleich von Papier und Vlies zu sehen: Das Papier hat eine hohe Tortuosität bei geringer Permeabilität und vice versa für das Vlies.

Für das Papier-Material liefern CFD-Simulationen in [122] eine durchschnittliche Tortuosität von  $\tau = 1,2$ . Bis auf die in-plane Permeabilität des Papiers sind alle Tortuositäten nah an diesem Wert. Das Binder-Modell wirkt sich demnach in in-plane Richtung auf diese Kennzahl aus. Hier sei erneut auf die Diskussion in [17] hingewiesen. Für die beiden modellierten Vlies-Materialien und die entsprechenden Realdaten ist die Tortuosität für die in-plane Richtung konstant, obwohl sich die Permeabilitäten deutlich unterscheiden. Mit  $\tau = 1,14$  ist sie geringer als in through-plane Richtung (1,17 bis 1,21). Nichtsdestotrotz korreliert im in-plane/through-plane Vergleich des Vlies-Materials die Tortuosität mit der inversen Durchlässigkeit der Materials, was erneut mit der Kozeny-Carman-Gleichung einhergeht. Anschaulich muss das Gas bei konstant gehaltenem Massenstrom weite Wege gehen. Nach der Festlegung der Parameter ist also eine erfolgreiche Einordnung der Simulationsergebnisse für die verschiedenen Geometrien gelungen. Zusammenfassend lässt sich für die GDL-Geometrie festhalten:

- Die Ergebnisse des leeren Kanals bezüglich der Wahl von  $\omega$  lassen sich auf die Simulation in GDL-Strukturen übertragen. Für den SRT-Algorithmus ist die Wahl  $\omega = 1,0$  l.u. bis 1,4 l.u. sinnvoll. Für den MRT-Algorithmus gibt es keine Beschränkungen. Aus numerischen Gründen wurde in dieser Arbeit ebenfalls ein Bereich von  $\omega = 1,0$  l.u. bis 1,4 l.u. gewählt.
- Es wird in jeder Simulation ein Vor- und Nachlauf von mindestens 30 l.u. hinzugefügt.

- Die Schicktdicke der GDL sollte mindestens 40 l.u. betragen.
- Für die  $\beta$  II-Geometrie kann im betrachteten Ausschnitt näherungsweise ein REV angenommen werden, zur Steigerung der Genauigkeit sind statistische Betrachtungen jedoch sinnvoll. Die Einflüsse in der Geometrie  $\gamma$  sind aufgrund des zusätzlichen Binder-Modells wesentlich stärker, sodass kein REV im betrachteten Ausschnitt vorliegt.
- Aus dem Vergleich mit experimentellen Daten wird deutlich, dass der LB-Algorithmus für die betrachteten Geometrien plausible Ergebnisse liefert.

Da gezeigt werden konnte, dass der LB-Algorithmus zuverlässig ist für die Strömungssimulation in diversen Geometrien, soll im Folgenden eine umgekehrte Argumentationsstruktur verfolgt werden: Mit Hilfe der LB-Strömungssimulation sollen die Parameter des GDL-Modells  $\beta$  so eingestellt werden, dass es in Bezug auf die Strömungseigenschaften möglichst genau mit den Vlies-Realdaten  $\alpha$  übereinstimmt.

### 5.3. GDL: Validierung des Geometrie-Modells

Im folgenden Kapitel wird der validierte LB-Algorithmus dazu verwendet, das Geometrie-Modell  $\beta$  zu untersuchen. Zunächst werden in Abschnitt 5.3.1 an Minimalbeispielen die wesentlichen Parameter identifiziert, die durch die GDL-Modellierung nicht eindeutig festgelegt sind, aber einen Einfluss haben auf das Strömungsverhalten in der Geometrie. In Abschnitt 5.3.2 werden diese freien Parameter des Modells so angepasst, dass die modellierte Geometrie in Bezug auf die Strömungseigenschaften den Realdaten entspricht.

#### 5.3.1. Parameter-Identifizierung

Im vorherigen Kapitel wurden strömungsmechanische Kennzahlen modellierter GDL-Strukturen mit experimentellen Daten verglichen. Damit wurde die Methode im Rahmen der experimentellen Genauigkeit erfolgreich validiert und ist nun für den bestimmten Parameterbereich universell einsetzbar, um Materialien zu charakterisieren. Im Prozess der Modellierung der Strukturen sind dabei Parameter wie die Faserdicke und Porosität so eingestellt, dass sie dem Originaldatensatz stochastisch entsprechen (vergleiche Kapitel 3.2). Mit dieser Voraussetzung wird im Vlies-Geometrie-Modell der Parameter  $\phi$  variiert. Das Schema in Abbildung 5.17 zeigt, wie die dadurch erstellten Realisierungen  $\beta$ , also Modellversionen, die mit römischen Zahlen bezeichnet sind, mit den erzeugten Geometrien zusammenhängen. So führt zum Beispiel der Wert des Parameters  $\phi_2$  zu einem Modell  $\beta$  II. Innerhalb dieses Modells können beliebig viele Geometrien, die stochastisch äquivalent sind, erzeugt und etwa für stochastische Fragestellungen verwendet werden. Alle Geometrien innerhalb des Kastens  $\beta$  II beispielsweise sind somit mikroskopisch unterschiedlich, stimmen aber in strukturellen makroskopischen Parametern überein. Als entscheidende strukturelle Parameter in Bezug auf die Strömungsmechanik (freie Parameter) werden der Porenradius, die Porenradienverteilung, die Faserstruktur und die auf einen Teilbereich der Geometrie bezogene lokale Porosität identifiziert. Das Ziel dieses Kapitels ist es, die Beziehung zwischen dem ursprünglichen Parameter  $\phi$  und dem Verhalten der Strömung in den Geometrien der Realisierung zu bestimmen. Also Charakterisierung des jeweiligen Modells werden dabei ausschließlich die freien Parameter betrachtet, die sich für das jeweilige  $\phi$  einstellen. Indem der Einfluss dieser Größen auf die Strömungs-Kennzahlen analysiert und verstanden wird, wird versucht, sie so einzustellen, dass sie den Strömungseigenschaften in den Realdaten entsprechen. Gelingt dies, wird also eine passende Version von  $\beta$  für die Realdaten  $\alpha$

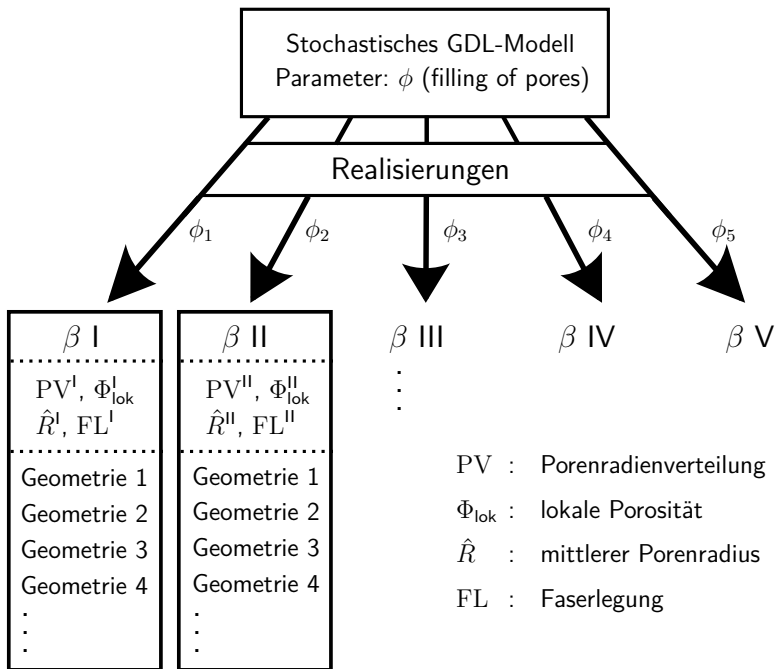


Abbildung 5.17.: Das Schema zeigt den Zusammenhang zwischen dem stochastischen Modellparameter  $\phi$  und den Realisierungen  $\beta$  des Materials, deren jeweilige Geometrien, durch die schwarzen Kästen dargestellt, stochastisch äquivalent sind und einige makroskopische Eigenschaften teilen. Ziel des Kapitels ist es, den Zusammenhang zwischen den Realisierungen und Strömungseigenschaften zu verstehen.

gefunden, wäre außerdem eine Validierung des Modells gelungen, denn das Modell kann eine passende Realisierung für das Ausgangsmaterial erzeugen. Das Vorgehen in diesem Kapitel ist wie folgt: Zunächst soll der Einfluss der freien Parameter auf einfach Strukturen studiert werden. Im nächsten Abschnitt wird das erlangte Verständnis dann auf die GDL-Geometrie übertragen.

Das GDL-Material besteht im Wesentlichen aus Fasern und Poren, durch die das Gas strömt. In der realen Geometrie können Poren nicht eindeutig abgegrenzt werden, was die Bestimmung eines Porendurchmessers schwierig macht, ein Aspekt, der im nächsten Abschnitt genauer erläutert wird. Um diesen Einfluss von Hohlräumen und Fasern auf physikalische Kenngrößen zu verstehen, werden daher zunächst Minimalbeispiele betrachtet. Es werden Strömungssimulationen in dreidimensionalen Strukturen durchgeführt, deren Querschnitte für jede Lage in Flussrichtung den schwarz-weißen Geometrien in Abbildung 5.18 entsprechen. Die Simulationsergebnisse für die jeweiligen Geometrien sind in Tabelle 5.3 aufgelistet. Die weißen Streifen der Bilder sind die Gas-Bereiche, demnach stellt ihre Breite den Porendurchmesser dar. Die schwarzen Bereiche sind Feststoff, in denen keine Strömung fließt. Bei einem Gitterabstand von  $1,5 \mu\text{m}$  werden die Simulationen in einem  $300 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.}$  ( $450 \mu\text{m} \times 150 \mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$ ) Gitter durchgeführt mit einem Vor- und Nachlauf von je  $100 \text{ l.u.}$  ( $150 \mu\text{m}$ ). Wie die Geometrie der LB-Simulationen in Abbildung 5.18 generiert wird, ist beispielhaft in Abbildung 5.19 zu sehen. Die Randbedingungen wurden in Kapitel 5.2.1 beschrieben. Als relevante Parameter für

Tabelle 5.3.: Zusammenfassung der Strömungs-Kennzahlen für die Geometrien in Abbildung 5.18. Dargestellt sind die Tortuosität  $\tau$ , die Permeabilität  $\kappa$ , der mittlere Porenradius  $\bar{R}$ , die Porenradienverteilung und die Anordnung der Fasern.

	$\tau$	$\kappa$	$\bar{R}$	$R$ -Verteilung	Anordnung
		D	l.u.		
(a)	1,0227	161,8	150,0	keine / homogen	
(b)	1,0227	161,8	150,0	keine / homogen	(a) spiegelverkehrt
(c)	1,0067	6,3	25,0	keine / homogen	
(d)	1,0060	1,6	12,5	keine / homogen	
(e)	1,0081	12,5	37,5	keine / homogen	
(f)	1,0248	17,8	37,5	2 unterschiedliche	rechts / links
(g)	1,0087	18,1	37,5	2 unterschiedliche	außen / mittig
(h)	1,0134	18,0	37,5	2 unterschiedliche	gemischt

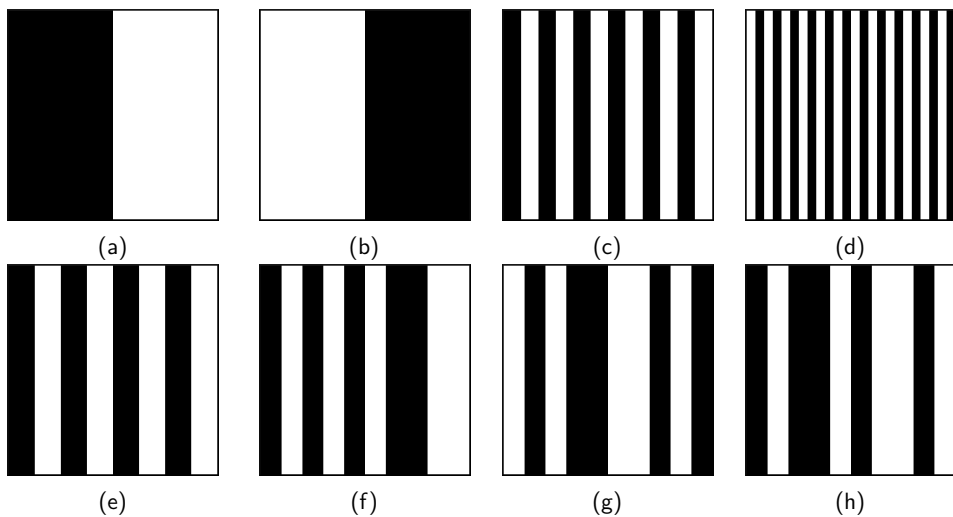


Abbildung 5.18.: Zweidimensionaler Querschnitt von verschiedenen, in Strömungsrichtung symmetrischen Geometrien, für die die simulierten Strömungs-Kennzahlen in Tabelle 5.3 zusammengefasst sind.

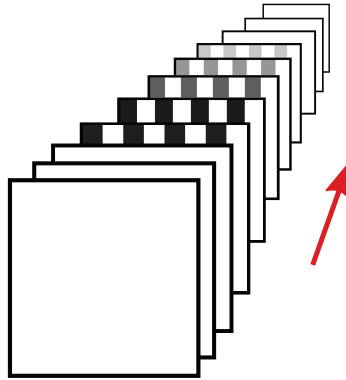


Abbildung 5.19.: Beispiel einer der Geometrien aus Abbildung 5.18, in denen die LB-Richtung in Pfeilrichtung durchgeführt wird. Die schwarz-weißen Bilder sind übereinandergestapelt und ein Vorlauf beziehungsweise ein Nachlauf sind hinzugefügt. Die Anzahl der Bilder ist nur schematisch. Die Simulationen werden in einem  $300 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.} \times 100 \text{ l.u.}$  Gitter durchgeführt mit einem Vorlauf und Nachlauf von je  $100 \text{ l.u.}$ . Der Gitterabstand ist  $1,5 \mu\text{m}$ .

das physikalische Ergebnis werden identifiziert:

1. Porosität  $\Phi$
2. mittlerer Porenradius  $\bar{R}$
3. Porenradienverteilung ( $R$ -Verteilung)
4. Feststoff-Anordnung

Obwohl diese Parameter nicht vollständig unabhängig sind, ist es sinnvoll, sie einzeln zu diskutieren. Die Porosität  $\Phi$  ist der Anteil des Feststoffs im Verhältnis zum Gesamtvolumen der Simulationsdomäne:

$$\Phi = \frac{V_{\text{solid}}}{V_{\text{ges}}} \quad (5.3)$$

In der Modellierung von Materialien legt sie, bezogen auf das Volumen, die Menge eines Feststoffs fest, aus der die Geometrie aufgebaut wird. In den hier verwendeten Geometrie-Modellen (zum Beispiel [6, 13]) werden Fasern einer bestimmten Faserdicke so lange zufällig im Raum verteilt, bis die Porosität des Originalmaterials erreicht ist. Obwohl es in diesem Modell wichtig ist die korrekte Porosität einzustellen, sagt im Umkehrschluss die Porosität nur wenig über die Eigenschaften dieses Materials aus. In allen Bildern der Abbildung 5.18 beispielsweise stimmt die Porosität überein (50 %), die Ergebnisse der Strömungssimulation sind jedoch sehr verschieden. In den Abbildungen 5.18a, 5.18c, 5.18d und 5.18e sind Querschnitte homogen verteilten Feststoffs mit jeweils unterschiedlichem Porenradius zu sehen. Ein wichtiger Zusammenhang, der sich in Tabelle 5.3 ablesen lässt, ist, dass bei leichtem Anstieg der Tortuosität die Permeabilität mit dem Porenradius deutlich zunimmt. Der Widerstand der Geometrie auf das Gas, der sich auf seine Druckdifferenz auswirkt, ist umso geringer, je zusammenhängender die Porenbereiche sind. Bei diesen Beispielen ist der Porenradius gleichverteilt und die Porenradienverteilung demnach trivial.

Um einen nicht-trivialen Fall handelt es sich im Vergleich der Bilder 5.18e und 5.18f. Hier ist der mittlere Porenradius konstant, sodass eine Aussage über den reinen Einfluss der Porenradienverteilung möglich ist. In Bild 5.18f kompensiert eine Pore mit überdurchschnittlicher Größe mehrere Poren unterschiedlicher Größe, sodass im Mittel der Porenradius dem in Bild 5.18e entspricht. Der Permeabilität in Bild 5.18f ist um  $\approx 50\%$  höher als im Bild 5.18e. Die Anwesenheit einer großen Pore führt zur besseren Durchlässigkeit des Materials. Unterschiedliche Porenradienverteilung bei gleichem Mittelwert können die Strömungseigenschaften des Materials ebenfalls stark beeinflussen.

Der Einfluss der Struktur auf die Tortuosität des Materials wird hauptsächlich im letzten Punkt, der Anordnung des Feststoffs, deutlich. Die drei Bilder 5.18f, 5.18g und 5.18h besitzen alle denselben Porenradius und dieselbe Porenradienverteilung. Im Bild 5.18g ist die Tortuosität daher am kleinsten, da die Strömung im Mittel weniger Umwege machen muss, um zur großen Pore zu gelangen. Die Permeabilität in diesen drei Bildern bleibt nahezu konstant. In Bezug auf die Permeabilität scheint die Feststoff-Anordnung daher, im Hinblick auf übrigen Parameter, einen geringen Einfluss zu haben. Bezogen auf die GDL-Konstruktion, auf die diese Argumentation übertragen werden kann, besteht der Feststoff aus Fasern fester Breite.

Neben der Anordnung der Porenradien im Querschnitt hat auch die Anordnung der einzelnen  $yz$ -Ebenen in Flussrichtung einen Einfluss auf die Eigenschaften des Materials in einer Strömung. Dies erkennt man leicht, wenn man im Gegensatz zu den bisherigen Beispielen die Schichten in Flussrichtung variiert. Stellt man sich beispielsweise eine Geometrie vor, in der Bild 5.18a auf Bild 5.18b in Flussrichtung folgt, wird sofort klar, dass die komplette Strömung reflektiert wird und damit natürlich die Kennzahlen maximal beeinflusst. Im Beispiel der GDL-Modellierung ist der Einfluss der Anordnung in Flussrichtung fast nie derart drastisch, sollte jedoch nicht außer Acht gelassen werden. Im nächsten Abschnitt wird unter anderem der Porositätsverlauf in Flussrichtung diskutiert, der oft eine gute erste Einschätzung darüber darstellt, wie gleichmäßig der Feststoff insgesamt verteilt ist.

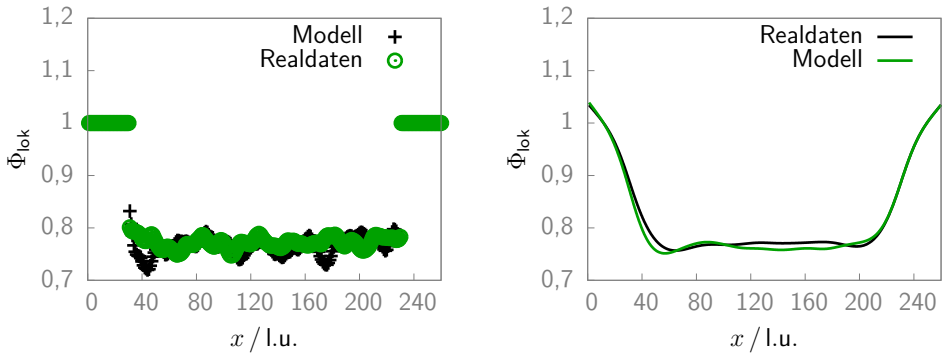
### 5.3.2. Virtuelle Anpassung an die Realdaten

Anhand des Schemas in Abbildung 5.17 wurde zu Beginn des letzten Abschnittes erklärt, dass der optimale Zusammenhang zwischen den Realisierungen des Vlies-Modells und den Strömungseigenschaften gesucht wird, um die Realisierung zu finden, die in ihren Strömungseigenschaften möglichst genau den Realdaten entspricht. Gelingt dies erfolgreich, überwiegen die Vorteile eines modellierten Materials, welche aus einer einfacheren Erzeugung stochastisch äquivalenter Geometrien entstehen. Nun sollen also verschiedene Realisierungen verglichen und mit dem durch die Minimalbeispiele gewonnenen Verständnis die Strömungseigenschaften interpretiert werden. Ein Beispiel dafür, wie zwei unterschiedliche Realisierungen des Vlies-Modells sich in ihren Strömungseigenschaften deutlich unterscheiden, ist in Tabelle 5.2 zusammengefasst.

Obwohl die freien Parameter nicht unabhängig voneinander sind, werden sie im Folgenden einzeln diskutiert und es wird versucht, den jeweiligen Einfluss des Parameters möglichst unabhängig zu beschreiben. Die Simulationen wurden alle in einer Geometrie mit den Abmessungen  $200\text{ l.u.} \times 600\text{ l.u.} \times 600\text{ l.u.}$  und einem Vorlauf von  $30\text{ l.u.}$  durchgeführt. Wie oben ist der Abstand zweier Gitterpunkte  $dx = 0,876\text{ }\mu\text{m}$ . Alle anderen Eingangsparameter sind so gewählt, wie in Kapitel 5.2 bestimmt. Die Daten für die Bestimmung der Porenradien und Porenradienverteilung wurden von den Entwicklern des GDL-Modells dankenswerterweise zur Verfügung gestellt<sup>5</sup>.

---

<sup>5</sup>Besonderer Dank gilt Prof. Dr. Volker Schmidt und Gerd Gaiselmann an der Universität Ulm, Institut für Stochastik.



(a) Verlauf der gemittelten Simulationsdaten - man erkennt die stochastischen Schwankungen der Geometrie. (b) Mit natürlichen kubischen Splines geglättete Funktion 5.20a - die stochastischen Schwankungen sind unterdrückt.

Abbildung 5.20.: Vergleich der Porosität der Geometrien  $\alpha$  (Realdaten) und  $\beta$  II (Modell) für die einzelnen  $yz$ -Schichten in  $x$ -Richtung.

**Porosität** Die Porosität  $\Phi$ , also der Anteil an Hohlraum im Gesamtvolumen des porösen Materials, wird im Modell so festgelegt, dass sie den gleichen Wert hat wie die Porosität in den Realdaten (circa 75 % [6]). Die Porosität, wie sie in dieser Arbeit verwendet wird, ist eine dimensionslose Kennzahl, wobei 1 einer Porosität von 100 % entspricht. In der Modellierung des Materials werden so lange Fasern im dreidimensionalen Raum generiert, bis die gewünschte Porosität erreicht ist. Obwohl die Gesamtporosität von Modell und Realdaten also identisch ist, hat die Porosität von Unterbereichen der Geometrie, zum Beispiel die eines Querschnitts, immer noch entscheidenden Einfluss auf das Ergebnis und unterliegt lokalen Schwankungen. Es ist demnach die Annahme zu prüfen, ob die lokalen Schwankungen der Porosität für die Realdaten mit denen für das Modell übereinstimmen.

In Abbildung 5.20a ist für Modell  $\beta$  II und die Realdaten jeweils die lokale Porosität  $\Phi_{\text{lok}}$  pro Schicht entlang der Flussrichtung  $x$  aufgetragen. Im Bereich des Vor- und Nachlaufs ist die Porosität per Definition:  $\Phi = 1$ . Jedem  $x$ -Wert ist somit die lokale Porosität  $\Phi_{\text{lok}}$  des  $yz$ -Querschnitts orthogonal zur Flussrichtung zugeordnet. Sowohl Modell als auch Realdaten unterliegen stochastischen Schwankungen wie in der Abbildung zu sehen. Ein möglicher Einfluss dieser Schwankungen auf die Strömungs-Kennzahlen ist leicht vorstellbar: Eine veränderte Porosität pro Schicht wirkt sich auf den Druck des anströmenden Gases und damit insbesondere auf die Permeabilität aus. Um diese Einflüsse zu verringern, wird bei der Permeabilitätsberechnung für jede Simulation ein Mittelwert aus mehreren Druckdifferenzen im Material gebildet (siehe Kapitel 4). Um die Schwankungen zu vergleichen, werden Mittelwert und Varianz der Porosität der einzelnen Schichten von Realdaten und Modell verglichen. Für die Realdaten ergibt sich ein Wert von  $\Phi_{\text{lok}} = 0,76 \pm 10,1 \%$ , für das Modell  $\Phi_{\text{lok}} = 0,76 \pm 7,4 \%$ . Wie zu sehen, erfüllt der Mittelwert der Porosität des Modells die Voraussetzung, dass sich die Gesamtporosität für Material und Modell nicht unterscheidet. Auch die Varianz der beiden Größen ist ähnlich und somit ist festzuhalten, dass im statistischen Mittel die untersuchten Schwankungen keinen nennenswerten Einfluss haben und zudem der Stichprobenumfang gleich gewählt werden kann. Um lokale systematische Abweichungen zu erkennen, werden an die Daten in Abbildung 5.20a natürliche kubische Splines gefittet. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.20b für den GDL-Bereich mit Vorlauf und Nachlauf dargestellt. Es sind keine signifikanten Abweichung zu erkennen und die These einer homogenen Porositätsverteilung mit zufriedenstellender Ähnlichkeit zwischen



Modell und Realdaten bestätigt sich. Da beim reinen Material hauptsächlich der Transportvorgang in Flussrichtung interessiert, wird an dieser Stelle auf dieselbe Untersuchung in  $y$ - oder  $z$ -Richtung verzichtet.

**Porenradius** Wie bereits erwähnt, ist der Porenradius in einem porösen Material wie der GDL nicht eindeutig definierbar, sondern nur im Rahmen einer Modellannahme [8]. Aufgrund der stochastischen Struktur kommt es auf mikroskopischer Ebene zu unterschiedlichsten Konstellationen aus Hohlräumen, deren geometrischen Ausmaße in den seltensten Fällen ein Radius oder Durchmesser zugeordnet werden kann. In dieser Arbeit wird mit der sphärischen Kontaktverteilung  $H(R)$  ein statistisches Maß verwendet, um die Porengröße zu beschreiben [124]. Sie gibt an, wie wahrscheinlich es ist, von einem zufällig ausgewählten Punkt im Porenraum im kürzesten Abstand  $R$  zum Feststoff zu gelangen. Der Mittelwert dieses Abstandes definiert den mittleren Porenradius  $\bar{R}$  der Struktur. In Tabelle 5.4 sind die simulierten Kennzahlen der Realdaten und verschiedene Versionen des Modells aufgelistet.

Tabelle 5.4.: Simulierte Strömungs-Kennzahlen verschiedener Realisierungen der Geometrie  $\beta$  verglichen mit dem jeweiligen mittleren Porenradius.

GDL-Typ	$\kappa$	$\tau$	$\bar{R}$
	D		$\mu\text{m}$
Realdaten	8,0	1,19	5,2
$\beta$ III	7,4	1,17	5,0
$\beta$ IV	7,9	1,17	5,2
$\beta$ V	8,5	1,16	5,3
$\beta$ VI	11,0	1,19	6,2
$\beta$ VII	11,9	1,19	6,9

Der Porenradius der Realdaten ist demnach  $5,2\mu\text{m}$ . Dieser Wert bestätigt, dass die Wahl der Auflösung mit den Ergebnissen des Kapitels 5.1 konsistent ist. Dort wurde vorgeschlagen, die Anzahl der Gitterpunkte für den Mittelwert des Porenradius auf mindestens 5 l.u. bis 10 l.u. für SRT beziehungsweise  $> 5$  l.u. für MRT zu setzen, um dort diskutierte unphysikalische Abweichungen zu vermeiden. Mit der vorhandenen Auflösung von  $0,876\mu\text{m}$  entspricht der mittlere Porenradius der Realdaten  $\approx 6$  l.u. und erfüllt damit diese Bedingung.

Vergleicht man den Porenradius für die verschiedenen Realisierungen in Tabelle 5.4, erkennt man deutlich eine Korrelation von Porenradius und Permeabilität. Ein größerer mittlerer Porenradius wirkt sich demnach so aus, wie es die Minimalbeispiele in Kapitel 5.3.1 beschreiben: Große Poren bedeuten weniger Widerstand in Bezug auf die Gasströmung. Das Ergebnis entspricht also den Erwartungen<sup>6</sup>.

Der Einfluss des mittleren Porenradius zeigt sich generell auch im Verhalten der Tortuosität. Wie im vorherigen Kapitel gezeigt, wäre eine reine Erhöhung des Porenradius aber mit einem leichten Anstieg der Tortuosität verbunden, ein Trend, die hier nicht eindeutig gegeben ist. Demnach sind neben dem Porenradius auch weitere der freien Parameter in den untersuchten Beispielen der Geometrien  $\beta$  III bis  $\beta$  VII für diese Abhängigkeit verantwortlich. Dies führt dazu, dass sich die Realdaten und das Modell für diese Beispiele nicht in beiden Kennzahlen

<sup>6</sup>Die freien Parameter sind voneinander abhängig. Da daher für eine Beschreibung, die über diese qualitative Betrachtung hinaus geht, eine multivariate Analyse nötig wäre und der damit verbundene Aufwand nicht im Verhältnis zum entsprechenden Mehrwert steht, wird darauf verzichtet.

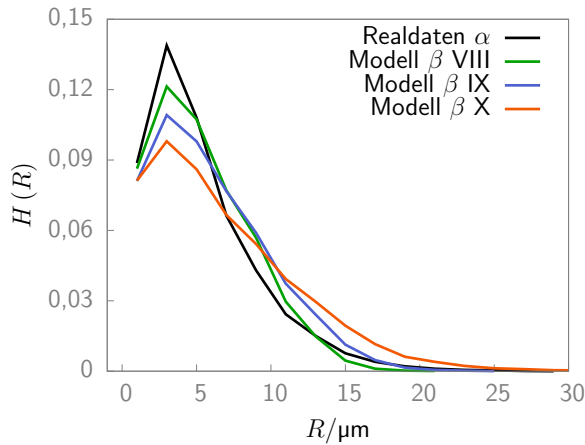


Abbildung 5.21.: Relative Häufigkeitsverteilung von  $R$  ausgedrückt durch die sphärische Kontaktverteilung  $H(R)$ . Sie gibt an, wie wahrscheinlich es ist, von einem zufällig ausgewählten Punkt im Porenraum im kürzesten Abstand  $R$  zum Feststoff zu gelangen. Aufgetragen sind verschiedene Realisierung der Vlies-Geometrie  $\beta$  und die Realdaten.

auf einmal gleichen. Wählt man das Material IV, stimmen die Permeabilitäten sehr gut mit denen der Realdaten überein, im Material VII sind es die Tortuositäten. Als einer der übrigen Parameter, der garantiert, dass bei Änderung des Porenradius die generelle Struktur konstant bleibt, wird im Folgenden die Porenradienverteilung diskutiert.

**Porenradienverteilung** Die sphärische Kontaktverteilung wurde als die Porenradienverteilung  $H(R)$  identifiziert. In Abbildung 5.21 ist sie für verschiedene Modell-Realisierungen und die Realdaten über den Porenradius  $R$  aufgetragen.

Für die Realdaten erkennt man ein Maximum unterhalb von  $5 \mu\text{m}$  und einen monotonen Abfall der Wahrscheinlichkeit in Richtung großer Poren, bis bei einem Bereich von  $R = 25 \mu\text{m}$  die Wahrscheinlichkeit quasi null ist. Für die modellierten Materialien ist das Maximum abgeflacht, die Wahrscheinlichkeit für große Poren aber größer. In Tabelle 5.5 sind die Kennzahlen für die drei Realisierungen des Vlies-Materials aus Abbildung 5.21 aufgelistet und mit den Realdaten verglichen. Wie aus Abbildung 5.21 zu erwarten, steigt der Porenradius an. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Trend der Porenradienverteilung für die drei betrachteten Realisierungen ähnlich ist: Die Kurven sind in der Höhe verschoben und breiter, gleichen sich aber in ihrer Form. Das führt dazu, dass die Tortuositäten in Tabelle 5.5 ansteigen, ein Verhalten, wie in Kapitel 5.3.1 für das Minimalbeispiel erklärt. Dort wurde ein leichter Anstieg der Tortuosität mit stark ansteigendem Permeabilität für einen größer werdenden Porenradius beobachtet. Hier ist das Verhältnis andersherum: Die Tortuosität steigt stark an bei geringer Änderung der Permeabilität. Nach der obigen Diskussion deutet dies auf eine zusätzliche Änderung der Lage der Fasern hin und ist nicht allein der Änderung von Porenradius oder Porenradienverteilung geschuldet.

Eine genaue Übereinstimmung in Permeabilität und Tortuosität ist trotz des sehr ähnlichen Porenradius von den Realdaten und dem Material  $\beta$  VIII nicht möglich, da der mittlere Porenradius, wie in Abbildung 5.21 zu sehen, auf unterschiedlichen Porenradien beruht. In den weiteren Analysen wird daher ein Material gewählt, welches im Mittel nur eine geringe

Tabelle 5.5.: Simulierte Strömungs-Kennzahlen verschiedener Realisierungen der Geometrie  $\beta$ . Die Variation von  $\tau$  bei gleichem Porenradius steht hier im Vordergrund.

GDL-Typ	$\kappa$	$\tau$	$\bar{R}$
	D		$\mu\text{m}$
Realdaten	8,0	1,19	5,2
$\beta$ VIII	8,3	1,17	5,2
$\beta$ IX	9,0	1,21	5,9
$\beta$ X	9,6	1,28	6,7

Abweichung von beiden Kenngrößen der Realdaten zeigt. Mit dem hier gewonnen Wissen ist in einer weiteren Realisierung mit dem Material  $\beta$  II eine sehr gute Validierung gelungen, die durch die durchgeführten Analysen nur um weniger als 2 % für die Tortuosität und weniger als 5 % für die Permeabilität abweicht.

Die Poren in Abbildung 5.21 haben eine Größe von bis zu 20  $\mu\text{m}$ . Für die Mindest-Abmessung der Dicke des Vlies-Materials für ein Simulationsgebiet, die in Kapitel 5.2.3 durchgeführt wurde, ergibt sich, dass das Gas im aus stochastischer Sicht schlechtesten Fall immerhin zwei Poren passiert. Nimmt man den mittleren Porenradius als Maßstab sind es acht. Da heißt, dass eine relativ geringe Porenanzahl pro Schicht in Flussrichtung zu einem repräsentativen Verhalten des Materials führt.

**Faserlegung und Material** Die Faserlegung ist eng mit der reziproken Porosität verwandt: Während die Porosität als Hohlraumanteil definiert ist, beschreibt die Faserlegung, wie der Feststoff die Strömung beeinflusst. Dennoch werden die qualitativen Aspekte hier separat diskutiert, da selbst bei der Mittelung der Porosität einzelner Schichten die Einflüsse einer Faseransammlung zum Beispiel nicht vollständig erfasst werden würden.

Wie in Abschnitt 5.3.1 gesehen, kann eine einfache Änderung der Schichtenfolge das Strömungsverhalten völlig verändern. Im Fasermaterial sind solche Fälle nicht typisch, da derart konstruierte Materialien durch die zufällige Generierung extrem unwahrscheinlich sind. Dennoch gibt es Aspekte, die beachtet werden müssen, wenn man Unterschiede zwischen Realstrukturen und modelliertem Material in Bezug auf Faserlegung und Material analysiert:

- **Faserlegung:** Ein systematischer Einfluss kann entstehen, wenn fertigungsbedingte Faserlegungen berücksichtigt werden. Im Vlies werden in der Herstellung in Abständen von  $\sim 1$  mm Wasserstrahlen orthogonal zur ursprünglichen Richtung aller Fasern in das Material geschossen, um die Fasern zusammenzukleben. Daraus entstehen Bündel von Fasern in regelmäßigen Abständen, die die Strömungseigenschaften beeinflussen. Im hier verwendeten Modell ist diese Faserlegung allerdings nicht berücksichtigt.
- **generelle Blockaden:** Ähnlich wie bei der Faserlegung gibt es mögliche Einflüsse, die über die reine Faserstruktur hinausgehen. Wie in Kapitel 5.2 gesehen, hat der Binder in Geometrie  $\gamma$  entscheidenden Einfluss auf die Strömung. Im Vlies wird kein Binder verwendet und es treten nur stochastisch bedingte Maxima und Minima an der Elektrode auf, die aufgrund zufällig entstandener Faser- oder Hohlraumansammlungen entstehen. Eine andere Situation entsteht, wenn die Kompression des Materials, zum Beispiel in einem Kanal-Steg-Szenario mit in Betracht gezogen wird. Ein Ungleichgewicht zwischen gedrückten Fasern unter dem Steg und Bereichen mit überdurchschnittlich hoher Porosität

unter dem Kanal entstehen und verändern die Strömung deutlich. Dieses Szenario ist in Kapitel 5.5 für die Realdaten diskutiert.

Mit der Faserlegung ist nun der Einfluss des verbleibenden Parameters bekannt. Die Untersuchung der lokalen Porosität ergab eine zufriedenstellende Ähnlichkeit in der Verteilung für Modell und Realdaten, sodass angenommen werden kann, dass von diesem Parameter kein entscheidender Einfluss auf die Strömungssimulation ausgeht. Für den Porenradius wurde festgestellt, dass trotz einer Übereinstimmung zwischen Modell und Realdaten die Kennzahlen voneinander abweichen. Daher wurde die Porenradienverteilung untersucht und herausgefunden, dass das Geometrie-Modell keine Überdeckung der Verteilungen zulässt. Als Hintergrund für diesen Unterschied konnte die Faserlegung, die anschließend theoretisch diskutiert wurde, identifiziert werden. Diese Schwäche des Modells wurde auf einen Fehler von unter 5 % quantifiziert für die betrachteten Kennzahlen Tortuosität und Permeabilität. Als erstes wesentliches Ergebnis ist es durch die Analyse der freien Parameter also gelungen, eine Realisierung (Geometrie  $\beta$  II) zu finden, die in ihren Strömungseigenschaften sehr gut mit den Realdaten übereinstimmt. Damit hat darüber hinaus eine Validierung des Geometrie-Modells stattgefunden, da es innerhalb dieses Modells prinzipiell möglich ist, das Ursprungs-Material abzubilden. Die anderen Realisierungen entsprechen Modellen, die bestimmte Voraussetzungen an das Material wie Faserdicke und Gesamt-Porosität erfüllen, aber unterschiedliche freie Parameter haben und somit unterschiedliche Strömungseigenschaften. Es sind virtuelle Geometrien, die nicht der Realität entsprechen. Dieses Verständnis ist demnach die Grundlage für ein virtuelles Materialdesign. So könnte beispielsweise der Porenradius oder die Porenradienverteilung gezielt variiert werden, um anhand der Ergebnisse der Strömungssimulation Vorschläge für reale GDL-Konstruktionen mit vorgegebenen Strömungseigenschaften zu liefern. Die Geometrie  $\beta$  II wurde in den vorangegangenen Kapitel bereits hauptsächlich als Realisierung des GDL-Modells verwendet und stellt auch im Folgenden die gewählte Realisierung des Vlies-Modells dar, wenn zum Beispiel mit dem Modell wie im nächsten Abschnitt stochastischen Fragestellungen nachgegangen wird. Dabei ist nochmal zu betonen, dass auch das Realmaterial eine stochastische Struktur ist und die durchgeführte Optimierung nur in Bezug auf diese Struktur erfolgt ist. Prinzipiell sollten daher jeweils Stichproben des Materials miteinander verglichen werden, was in Bezug auf die Realdaten, wie oben diskutiert, schwierig zu realisieren ist und hier nicht verfolgt wurde. Es sei angemerkt, dass die hier diskutierten Unterschiede der Permeabilitäten im Vergleich mit den Schwankungen der experimentellen Werte, die in 5.2 diskutiert wurden, marginal sind und die dortige Argumentation nicht beeinflussen.

## 5.4. GDL: Fehleranalyse

Im folgenden Kapitel werden zwei wichtige Einflüsse der LB-Simulation in GDL-Materialien auf systematische Fehler untersucht. Abschnitt 5.4.1 untersucht die Skalierung, Abschnitt 5.4.2 analysiert systematische Fehler der Algorithmen SRT und MRT. Es wird jeweils der Einfluss auf die Permeabilität betrachtet, da diese in den bisherigen Analysen größeren relativen Schwankungen unterlag. Die Methoden können auf die Tortuosität übertragen werden.

### 5.4.1. Skalierung

Jedes Modell entspricht einer eingeschränkten Beschreibung der Realität, daher ist es wichtig, die wesentlichen Abweichungen beziehungsweise Fehler zu identifizieren und zu untersuchen. Bereits diskutiert wurde der Einfluss des statistischen Fehlers. Als entscheidende numerische Fehlerquellen für das hier verwendete Modell werden Skalierungseffekte und die  $\omega$ -Abhängigkeit

des SRT- beziehungsweise MRT-Algorithmus ausgemacht. Ihr Einfluss soll in diesem und in Abschnitt 5.4.2 ermittelt werden. Um den systematischen vom stochastischen Fehler zu trennen, werden mehrere Simulationen für jede Anordnung simuliert. Dies ist auch der Unterschied zwischen der Analyse in Abschnitt 5.4.2 und der in Abschnitt 5.2.2, in dem der Einfluss bereits für einzelne Simulationen diskutiert wurde. Als Modell wird jeweils das im vorherigen Kapitel validierte Material  $\beta$  II verwendet.

Bisher wurde jeweils die Skalierung der Modell-Geometrie der Auflösung entsprechend gewählt. Die Diskussion der Skalierungseffekte soll die Frage beantworten, ob diese einen entscheidenden Einfluss auf das Ergebnis haben und bis zu welcher Skalierung angemessene Ergebnisse zu erwarten sind. Der Gitterabstand der Geometrie wurde für die Realdaten anhand von Röntgen-Tomografie-Bildern auf  $0,876\ \mu\text{m}$  festgelegt und im Modell wurde diese Auflösung übernommen<sup>7</sup>. Die richtige Wahl der Skalierung der eingelesenen Bilder besteht aus einem Gleichgewicht zwischen zwei Extremen:

- **Auflösung zu grob:** Man erhält signifikante Abweichungen im Simulationsergebnis bei unterschiedlichen Auflösungen - die Strukturen werden nicht identisch abgebildet, sind zu stark zusammengefasst oder gar nicht vorhanden.
- **Auflösung zu fein:** Der wesentliche Nachteil einer hohen Auflösung ist die benötigte Rechenzeit. Spielt die Rechenzeit eine untergeordnete Rolle (beispielsweise bei einem sehr kleinen Gebiet) und kann man die Auflösung quasi beliebig wählen, können numerische Effekte wichtig sein. Da alle hier betrachteten Größen weit entfernt von der numerischen Genauigkeit sind, wird dieser Effekt nicht weiter betrachtet.

Die Herausforderung besteht darin, eine Auflösung zu finden, mit der weitestgehend Skalenunabhängigkeit gewährleistet ist. Dies ist der Fall, wenn sich das Ergebnis mit höherer Skalierung nicht mehr signifikant vom Ergebnis der ursprünglichen Skalierung unterscheidet. Die Geometrien werden durch die Bildbearbeitungssoftware Fiji [125] in alle drei Raumrichtungen skaliert. Skaliert man beispielsweise auf die halbe Auflösung, heißt das, dass jeweils zwei Gitterpunkte zusammengefasst werden. Wenn ihre Eigenschaften unterschiedlich sind, also einer der beiden Punkte den Feststoff repräsentiert und der andere den Porenraum, entscheidet die Software anhand der Nachbarpunkte, welche Eigenschaft der zusammengeführte Punkt hat. Als Plausibilitäts-Check wird jeweils überprüft, ob die Gesamtporosität der skalierten Geometrie mit dem des Ursprungsbildes übereinstimmt.

Sowohl für die Realdaten als auch für die modellierte GDL sind in Abbildung 5.22 die simulierten Permeabilitäten über verschiedene Auflösungen aufgetragen. Die ursprüngliche Geometrie hat eine Auflösung von  $200\ \text{l.u.} \times 600\ \text{l.u.} \times 600\ \text{l.u.}$  mit einem Vorlauf von  $30\ \text{l.u.}$ . Die Auflösungen der übrigen Geometrien sind in alle Raumrichtungen mit demselben Faktor skaliert. Alle betrachteten Geometrien haben dieselbe makroskopische Größe von  $175\ \mu\text{m} \times 526\ \mu\text{m} \times 526\ \mu\text{m}$ . Auf der  $x$ -Achse der Abbildung 5.22 ist jeweils die Auflösung des Querschnitts der Simulation angegeben. Für die Realdaten wurde jeweils eine Simulation pro Auflösung für das Material  $\alpha$  durchgeführt. Für das Modell  $\beta$  II ist der Mittelwert von zehn in stochastisch äquivalenten Geometrien durchgeführten Simulationen pro Auflösung und deren Standardabweichung dargestellt. Ab einer Auflösung von  $150\ \text{l.u.}$  stimmen die Ergebnisse für die Simulationen von Realdaten mit dem Modell gut überein. In diesem Bereich liegt sie meistens im Konfidenzintervall der modellierten Geometrie. Nur für die höchste Auflösung ist eine leichte Abweichung vom Konfidenzintervall zu sehen. Ob diese Simulation der Realdaten ein statistischer Ausreißer oder eine signifikante Abweichung ist, wäre nur über eine stochastische Betrachtung der Realdaten

---

<sup>7</sup>Der Dank gilt dem Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH, insbesondere Dr. Christian Tötze für das zur Verfügung stellen der Realdaten des Vlies-Materials.

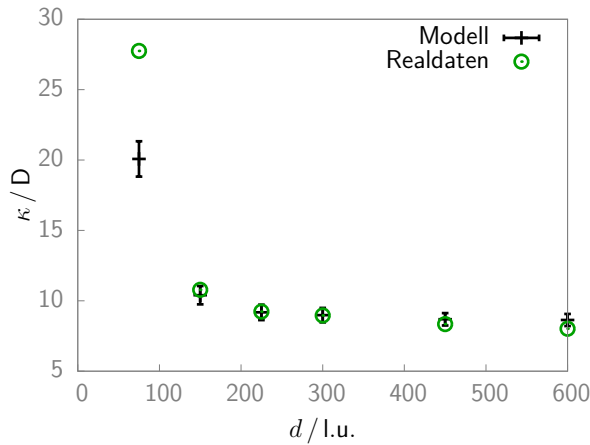


Abbildung 5.22.: Die Permeabilitäten aufgetragen über den Querschnitt  $d$  der jeweiligen Simulation. Die makroskopischen Abmessungen aller Simulationen ist konstant, nur die Skalierung (Gitterauflösung) ändert sich. Verglichen ist eine Simulation der Realdaten mit einer Stichprobe mit dem Stichprobenumfang  $N = 10$  für das Modell der Geometrie  $\beta$  II.

herauszufinden, auf die auch hier aus Mangel an Daten für die Realgeometrie verzichtet wird. Orientiert man sich näherungsweise an den einzelnen Simulationen in den Realdaten, ist das Ergebnis sehr zufriedenstellend. Vergleicht man den Verlauf der Kurven für Realdaten und Modell, fällt auf, dass für die Realdaten auch für höhere Auflösungen die Permeabilität leicht abfällt, während für das Modell, qualitativ betrachtet, die Permeabilität einen konstanteren Verlauf nimmt. Um diese Aussage zu überprüfen, sollen die verschiedenen Skalierungen des modellierten Materials verglichen werden. Die verschiedenen Simulationen pro Skalierung stellen jeweils eine der Stichproben dar, die mit einem Hypothesen-Test untersucht werden. Der Gitterabstand ist an die neue Auflösung des Querschnitts angepasst. Die Parameter-Einstellungen der Strömungssimulation sind für alle Fälle gleich. Demnach sind es alleine die stochastischen Parameter des GDL-Modells, die die stochastische Natur der Strömungssimulations-Ergebnisse erzeugen. Für die verschiedenen Auflösungen werden Strömungssimulationen in denselben zehn Geometrien mit unterschiedlicher Auflösung durchgeführt. Um die Voraussetzung für einen studentischen t-Test<sup>8</sup> zu erfüllen, wird zunächst auf Normalverteilung geprüft. Daher wird ein Shapiro-Wilk-Test [126] durchgeführt. Für alle Stichproben, die hier beschrieben werden, ergibt dieser Test, dass die Stichprobe signifikant aus einer normalverteilten Grundgesamtheit entnommen wurde, sodass der t-Test durchgeführt werden kann.

Es werden zwei Stichproben mit den Auflösungen  $d = 450$  l.u. beziehungsweise  $d = 600$  l.u. verglichen. Für den Vergleich wird ein abhängiger t-Test durchgeführt. Die Simulationen, die dieselbe Geometrie mit unterschiedlichen Auflösungen aufweisen, sind paarweise abhängig. Der Mittelwert der Differenzen der Wertepaare der beiden Stichproben wird auf die Nullhypothese geprüft, die besagt, dass er null ist. Das Signifikanzniveau wird auf  $\alpha = 0,5$  gesetzt. Die Nullhypothese wurde nicht angenommen, der Unterschied der beiden Stichproben ist demnach signifikant. Durch die Skalierung wird ein systematischer Fehler verursacht. Für das Paar  $d = 300$  l.u. und  $d = 600$  l.u. wird der Test mit demselben Ausgang wiederholt. Vergleicht man

<sup>8</sup>Diese und die weiteren statistischen Tests wurden mit der Software Origin (OriginLab, Northampton, MA) durchgeführt.

die Mittelwerte, ergeben sich relativ zur Stichprobe mit der höchsten Auflösung systematische Fehler von 4 % für  $d = 450$  l.u. beziehungsweise 11 % für  $d = 300$  l.u.. Der systematische Fehler nimmt mit höherer Auflösung demnach ab, wie auch in Kurve 5.22 qualitativ zu erkennen. Beim Vergleich  $d = 600$  l.u. mit einer noch höheren Auflösung wäre demnach analog zu erwarten, dass der systematische Fehler sinkt. Mit der modellierten Geometrie wäre eine höhere Auflösung schnell zu realisieren. Aufgrund der wesentlich größeren Unsicherheit der experimentellen Daten, mit denen das Ergebnis zu vergleichen wäre, ist der Informationsgewinn, den eine solche Simulation mit sich bringen würde, klein gegenüber dem damit verbundenen Rechenaufwand. Daher wird auf diese Analyse verzichtet.

Insgesamt hat beispielsweise die Geometrie mit der Auflösung  $d = 300$  l.u. einen systematischen Fehler im niedrigen zweistelligen Bereich: 11 % plus der unbekannten systematische Fehler von  $d = 600$  l.u., der kleiner ist als 4 %. Da die Simulation in den Realdaten in Abbildung 5.22, wie eben beschrieben, gut mit den Simulationen in den Modelldaten übereinstimmen, wird angenommen, dass der systematische Einfluss der Skalierung sich dort ähnlich verhält und die relativen Aussagen zwischen Realdaten und Modelldaten weiterhin Bestand haben.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass für die betrachteten Auflösungen des Vlies-Materials jeweils ein systematischer Fehler der Skalierung berücksichtigt werden sollte. Da dieser unterschiedlich ist für verschiedene Auflösungen, ist es sinnvoll, bei Parametervariationen die Auflösung konstant zu halten oder gegebenenfalls den systematischen Fehler abzuziehen. Im Folgenden soll diese Erkenntnis genutzt werden, um den Einfluss des Kollisionsparameters  $\omega$ , der für eine einzelne Simulation bereits in Kapitel 5.2.2 diskutiert wurde, stochastisch zu untersuchen.

### 5.4.2. Vergleich von MRT und SRT

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, wie sich die Skalierung auf die betrachteten Kenngrößen auswirkt. Unter Berücksichtigung eines systematischen Fehlers ist es möglich, Geometrien mit geringerer Auflösung für Parametervariationen oder ähnliche Studien zu nutzen. Da der systematische Fehler sich gleichermaßen auf eine Skalierungsstufe auswirkt, gilt dies insbesondere für relative Betrachtungen, in denen die Auflösung konstant ist. Da der Rechenzeitvorteil aufgrund der dreidimensionalen Struktur mindestens kubischen Einfluss hat (vergleiche Kapitel 4), bietet sich dies besonders für stochastische Analysen an. Mit so einer stochastischen Analyse soll im Folgenden der Unterschied der beiden Algorithmen SRT und MRT untersucht werden. Die folgenden Simulationen werden auf einem auf die Hälfte skalierten Gitter durchgeführt mit den Abmessungen  $100$  l.u.  $\times$   $300$  l.u.  $\times$   $300$  l.u.. Der sich daraus ergebende systematische Fehler, der im letzten Abschnitt diskutiert wurde, ist bei diesen relativen Betrachtungen von untergeordneter Wichtigkeit. In 5.2.2 wurde bereits diskutiert, dass der MRT-Algorithmus konstant ist gegenüber Veränderungen von  $\omega$  (bei konstanter Reynoldszahl). Für den SRT-Algorithmus hingegen ergab sich eine unphysikalische Abhängigkeit. Es wurde allerdings ein Bereich festgelegt, in dem der SRT-Algorithmus verwendet werden kann. Stochastisch sollen nun drei Nullhypothesen untersucht werden:

1. Die Mittelwerte der Differenzen der Wertepaare zwischen der Stichproben für  $\omega = 0,5$  l.u. und  $\omega = 1,2$  l.u. im SRT-Algorithmus unterscheiden sich nicht signifikant von null.
2. Der Mittelwert der Differenz der Wertepaare zwischen den beiden Stichproben im SRT-Algorithmus und im MRT-Algorithmus für  $\omega = 1,2$  l.u. unterscheiden sich nicht signifikant von null.

3. Die Mittelwerte der Differenz der Wertepaare zwischen der Stichproben für  $\omega = 0,5$  l.u. und  $\omega = 1,2$  l.u. im MRT-Algorithmus unterscheiden sich nicht signifikant von null.

Die Alternativhypothesen sind jeweils das Gegenteil der jeweiligen These. Einzelne Simulationen der jeweiligen Stichprobe der hier betrachteten Mittelwerte sind bereits in Kapitel 5.2.2 diskutiert worden. Die Mittelwerte für die untersuchten Punkte sind in Tabelle 5.6 zusammengefasst.

Tabelle 5.6.: Übersicht der Ergebnisse zur MRT/SRT-Abhängigkeit verschiedener  $\omega$  für die Geometrie  $\beta$  II.

	Algorithmus	$\omega$	$\bar{\kappa}$	$\sigma_{\bar{\kappa}}$
		l.u.	D	%
a)	SRT	0,5	12,5	5,2
b)	SRT	1,2	8,6	5,8
c)	MRT	0,5	8,9(79)	5,7
d)	MRT	1,2	8,9(81)	5,7

Nachdem alle Mittelwerte signifikant auf eine normalverteilte Grundgesamtheit getestet wurden, kann der Hypothesentest durchgeführt werden. Sowohl die Wahl des Algorithmus als auch des Kollisionsparameters  $\omega$  bedeuten keine Veränderung der physikalischen Gegebenheiten. Aus diesem Grund wird erneut ein abhängiger t-Test, der Paare derselben Geometrie vergleicht, analog zum letzten Abschnitt durchgeführt. Die erste Nullhypothese wird widerlegt und somit bestätigt sich die Beschreibung des signifikanten Fehlers in 5.2.2. Die Wahl der verglichenen Kollisionsparameter  $\omega = 0,5$  l.u. und  $\omega = 1,2$  l.u. war zufällig und sollte strenggenommen für alle Wertepaare von  $\omega$  gezeigt werden. Wie in Abbildung 5.10a aber bereits suggeriert wurde, ist eine solche Abweichung der generelle Trend, den die Wahl des Kollisionsparameters im SRT-Algorithmus hervorruft. Da die stochastische Analyse dies für ein Wertepaar bestätigt, wird in Analogie ein ähnliches Ergebnis für die übrigen Wertepaare erwartet.

Im Kapitel 5.2.2 wurde ein Bereich von  $\omega = 1,0$  l.u. bis  $1,4$  l.u. für den Kollisionsparameter vorgeschlagen. Um dies stochastisch zu begründen, wird erneut ein t-Test durchgeführt, der die 2. Hypothese prüfen soll und damit die Algorithmen SRT und MRT für  $\omega = 1,2$  l.u. vergleicht. Auch diese Hypothese wird nicht angenommen, was einen systematischen Fehler zwischen dem MRT- und dem SRT-Algorithmus für dieses  $\omega$  bedeutet. Die Wahl, ob einer der beiden Algorithmen das genauere Ergebnis liefert, ist allein aufgrund dieses Tests nicht zu treffen. Im Hinblick auf die bisherige Überlegenheit des MRT-Algorithmus, insbesondere in Bezug auf die Abhängigkeit von  $\omega$ , wird dieser in der Fehlerbetrachtung als Referenz angenommen. In Tabelle 5.6 sind die Mittelwerte der Werte für den SRT-Algorithmus a) und b) jeweils mit dem Referenzwert d) verglichen. Daraus ergibt sich ein Fehler von 39% für  $\omega = 0,5$  l.u. beziehungsweise 4% für  $\omega = 1,2$  l.u.. Trotz der systematischen Abweichung ist das Ergebnis der obigen Diskussion, welche den Parameterbereich für  $\omega$  im SRT-Algorithmus festlegt, vertretbar. Die SRT-Ergebnisse in dieser Weise relativ zum MRT-Algorithmus zu bewerten birgt natürlich die Gefahr, systematische Fehler, die dort auftreten, nicht mit zu berücksichtigen. Zudem weicht der Verlauf der Kurve für den MRT-Algorithmus in Abbildung 5.10a optisch nicht von einem konstanten Wert ab.

Aus diesem Grunde wird mit der dritten Hypothese ein t-Test zum Vergleich der Werte c) und d) in Tabelle 5.6 durchgeführt. Auch diese Hypothese wird nicht angenommen, was den obigen Ergebnissen widerspricht, die von einer konstanten Permeabilität für alle  $\omega$  ausgehen. Vergleicht man allerdings die Mittelwerte, ergibt diese Konstellation einen systematischen Fehler von



nur 0,2%. Zusammenfassend heißt das, dass auch bei der Wahl von  $\omega$  im MRT-Algorithmus ein systematischer Fehler entsteht. Dieser ist allerdings sehr gering, was zur Überlegenheit gegenüber dem SRT-Algorithmus führt. Auch wird in Anlehnung an Abbildung 5.10a davon ausgegangen, dass sich die übrigen Werte von  $\omega$  analog zu dieser Argumentation verhalten.

### 5.5. Kanal-Steg-Szenario

Bis hierher wurde das reine GDL-Material unter den Betriebsbedingungen einer Brennstoffzelle betrachtet. Im nächsten Schritt soll dieselbe Geometrie verwendet werden, um die Gasströmung in der Brennstoffzelle realistischer darzustellen. Dazu wird die Kanal-Steg-Struktur der Brennstoffzelle mit berücksichtigt. Im Abschnitt 5.5.1 wird zunächst die Geometrie mit den Betriebsbedingungen beschrieben. Anschließend werden in Abschnitt 5.5.2 die Ergebnisse vorgestellt. Die Homogenität der Gasströmung an der Elektrodenseite abhängig vom Kompressionsgrad der GDL steht dabei im Fokus.

#### 5.5.1. Aufbau

In diesem Abschnitt soll, erneut unter den Betriebsbedingungen der HT-PEFC, untersucht werden, wie gut die Gasdiffusionsschicht ihre Funktion in der Brennstoffzelle erfüllt. Durch die Kanal-Steg-Struktur entsteht ein Ungleichgewicht in der Gasversorgung an der Elektrode: eine überdurchschnittliche Versorgung unter dem Kanal und eine unterdurchschnittliche Versorgung unter dem Steg. Die GDL ermöglicht eine Nutzung der Fläche unter dem Steg, indem sie durch ihre poröse Struktur eine Querströmung erzeugt, die das Gas möglichst homogen an der Elektrode verteilt. Diese Verteilung ist in der realen Brennstoffzelle von Faktoren wie der Leitfähigkeit des Fasermaterials beziehungsweise dem Gesamtwiderstand des Elektronenflusses abhängig. Ein höherer Anpressdruck der Bipolarplatte beispielsweise kann zu einem besseren Kontakt zwischen Fasern und Steg führen, wodurch die Querleitfähigkeit des Elektronenflusses beeinflusst werden kann. Eine höhere Querleitfähigkeit der Elektrode kann den Stromfluss zum Beispiel dahingehend beeinflussen, dass es für das Gesamtsystem energetisch günstiger ist, eine höhere Zahl von Elektronen unter dem Kanal zu produzieren. Betrachtungen, die über die reine Gasströmung hinausgehen, sollen aber weiterhin nicht Bestandteil dieser Arbeit sein. Die Gasströmung wird beeinflusst vom Kompressionsgrad der GDL, der mit dem Anpressdruck der Bipolarplatte auf die GDL korreliert. Der Einfluss dieser Kompression auf die Gasströmung in einem Kanal-Steg-Szenario soll in diesem Kapitel untersucht werden. Der Kompressionsgrad, im Folgenden  $K$  genannt, entspricht dem Volumenanteil der von der Gesamtgeometrie durch die Komprimierung eingebüßt wurde.

In 2.1 stellt der mit II gekennzeichnete Ausschnitt den Bereich dar, dem die folgende Simulation in der Brennstoffzelle entspricht. Das gesamte Strömungsszenario ist in Abbildung 5.23 schematisch dargestellt. Dort ist eine Kanal-Steg-Geometrie mit komprimierter GDL zu sehen. An der Anodenseite der HT-PEFC strömt Wasserstoff von der Kanalseite in den GDL-Bereich und verteilt sich während der Flussrichtung in  $y$ -Richtung entlang der Elektrode. Mit einem hinzugefügten Vor- und Nachlauf sowie Bounce-Back-Randbedingungen an den Feststoffen beziehungsweise Randbereichen gelten dieselben Bedingungen wie zuvor. An der Kanalseite wurde eine konstante Geschwindigkeit vorgegeben und ein konstanter Druck an der Elektrode. Der gesamte Simulationsbereich hat die Abmessungen  $480 \text{ l.u.} \times 600 \text{ l.u.} \times 600 \text{ l.u.}$ , wobei die GDL-Dicke beziehungsweise der Vorlauf und Nachlauf vom Kompressionsgrad abhängen. Bei einem Gitterabstand von  $0,876 \mu\text{m}$  entspricht das  $0,42 \text{ mm} \times 0,5 \text{ mm} \times 0,5 \text{ mm}$ . Nach einer

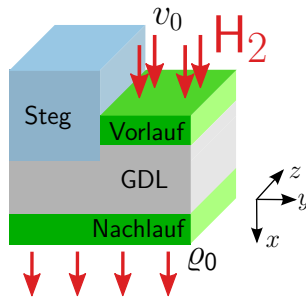


Abbildung 5.23.: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Wasserstoff gelangt über den Kanal in die GDL. Hier wird er durch die poröse Struktur unter den Steg getragen, sodass er über die gesamte Fläche an der Elektroden-seite austritt. Es wurde ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. An der Kanalseite wird eine Geschwindigkeit, an der Elektroden-seite eine Massendichte vorgegeben. An allen Rändern und Grenzen zum Fasermaterial werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen.

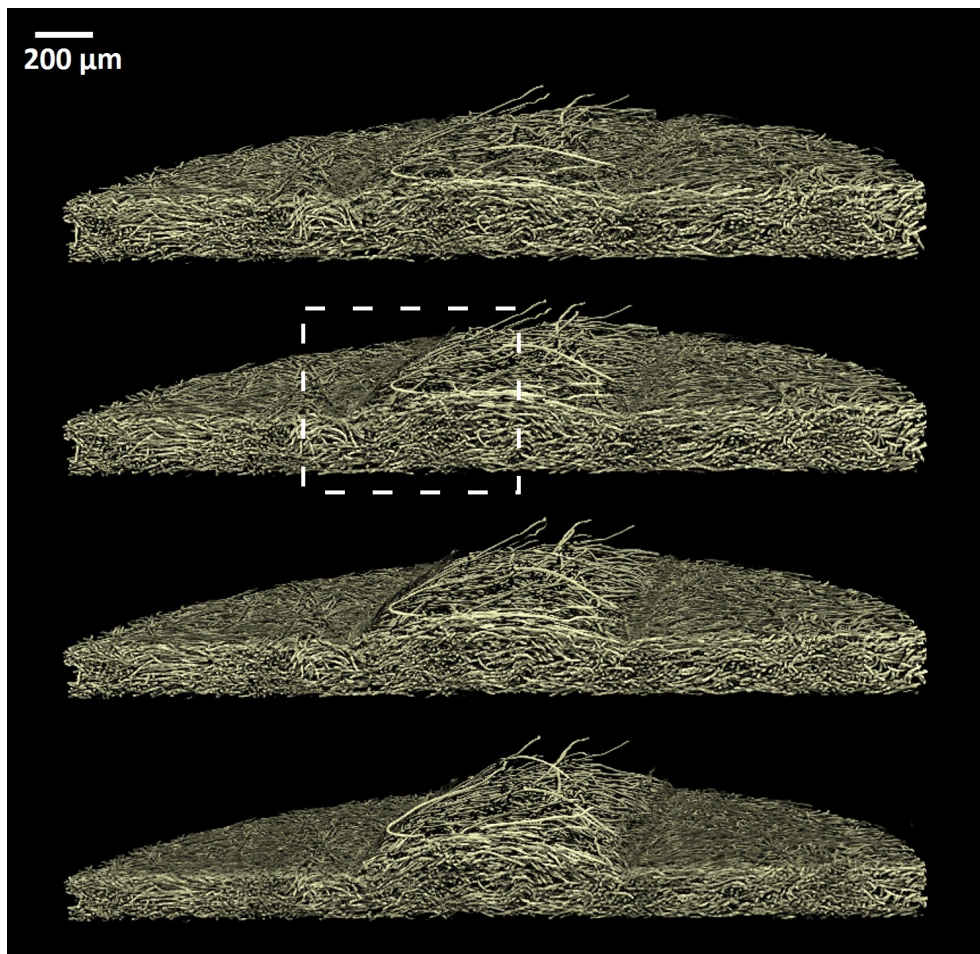
qualitativen Analyse werden die Ergebnisse im folgenden Abschnitt anhand von drei Aussagen überprüft und bewertet.

Als Geometrie werden Realdaten der Vlies-Struktur verwendet. Sie werden erneut generiert aus Synchrotron-Tomografie-Daten, die in Kapitel 3.1 diskutiert wurden. Um das Kanal-Steg-Szenario, wie es in einer Brennstoffzelle vorkommt, abzubilden, wurde mit einer eigens dafür konstruierten Stempel-Vorrichtung das Vlies-Material verschiedenen Anpressdrücken ausgesetzt, sodass das für eine Brennstoffzelle typischen Kanal-Steg-Szenario entsteht. Der Aufbau und die hier verwendeten Ergebnisse wurden in [5] veröffentlicht. In Abbildung 5.24 sind die erhaltenen Bilder der Synchrotron-Messung im Material für  $K = 0\%$ ,  $10\%$ ,  $18\%$  und  $29\%$  abgebildet. Die Stegbereiche (rechts und links) beziehungsweise der Kanalbereich in der Mitte sind deutlich zu erkennen. Mit zunehmender Kompression (von oben nach unten) werden mehr Fasern in den Kanalbereich gedrückt und die Dicke des Materials wird geringer, sodass insbesondere unter dem Steg Bereiche mit gehäuften Faseransammlungen entstehen. Um die Strömungssimulationen mit der zur Verfügung stehenden Rechenzeit durchführen zu können, wird ein Teilbereich der gezeigten Bilder betrachtet. In Abbildung 5.24 ist dieser Bereich mit einem weißen Kasten markiert.

### 5.5.2. Ergebnisse

Die LB-Strömungssimulationen liefern die Geschwindigkeit und die Dichte an jedem Punkt im Simulationsgebiet. Wie bereits diskutiert, ist die Geschwindigkeit des Gases in guter Näherung äquivalent zum Massenfluss. Da hauptsächlich der Massentransport in Hauptflussrichtung von Bedeutung ist, ist  $v_x$  die Größe, die zur Auswertung der Homogenität betrachtet wird. Abbildung 5.23 definiert die  $y$ -Richtung als diejenige, die unter dem Steg beginnt und unter dem Kanal aufhört. Die gleichmäßigste und damit effizienteste aller Verteilungen wäre ein konstantes  $v_x$  in  $y$ -Richtung. Besonders interessant ist die Verteilung am Ende der GDL, also an der Schicht, an der das Gas auf die Elektrode trifft. Diese Verteilung von  $v_x$  wird zentral in der folgenden Analyse sein.

Abbildung 5.25 zeigt die Verteilung von  $v_x$  in der obersten  $yz$ -Ebene an der Elektroden-seite, also direkt an der Grenze zum Nachlauf, für die beiden Kompressionsstufen  $0\%$  (Abbildung 5.25a)



Reprinted from Publication Journal of Power Sources, 253, C. Tötzke, G. Gaiselmann, M. Osenberg, J. Bohner, T. Arlt, H. Markötter, A. Hilger, F. Wieder, A. Kupsch, B.R. Müller, M.P. Hentschel, J. Banhart, V. Schmidt, W. Lehnert, I. Manke, Three-dimensional study of compressed gas diffusion layers using synchrotron X-ray imaging, 123-131, ©2014, with permission from Elsevier.

Abbildung 5.24.: Tomogramm einer Probe der Geometrie  $\alpha$  für die Kompressionsstufen 0 %, 10 %, 18 % und 29 % (von oben nach unten). Entnommen aus [5].

und 29 % (Abbildung 5.25b). Diese Simulation wurde mit dem SRT-Algorithmus durchgeführt, alle weiteren mit dem MRT-Algorithmus.

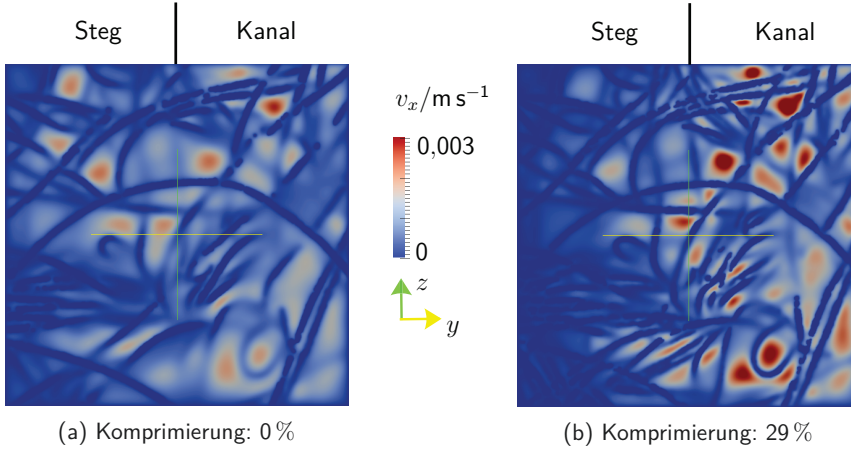


Abbildung 5.25.: Geschwindigkeits-Profil der  $yz$ -Ebene an der Elektroden- und Kanal-Seite. Verglichen ist eine unkomprimierte GDL mit einer um 29 % komprimierten GDL.

Analog zu Kapitel 5.2 ist deutlich zu erkennen, wie die Struktur der GDL dazu führt, dass sich über die gesamte Fläche verteilt lokale Maxima und Minima für  $v_x$  ausbilden. Des Weiteren wird ein Ungleichgewicht in  $y$ -Richtung deutlich. Dieses ist stärker für die größere Komprimierung auf der rechten Seite: Unter dem Steg ist eine unterdurchschnittliche Versorgung zu erkennen, unter dem Kanal ist sie überdurchschnittlich. Insgesamt führt diese qualitative Betrachtung demnach zu dem Schluss, dass die größere Komprimierung zu einer schlechteren Versorgung der Elektrode führt.

Es wird neben den verschiedenen Komprimierungsgraden eine weitere Vergleichs-Geometrie betrachtet: Anstelle der Faserstruktur wird ein leerer Kanal mit derselben Dicke der jeweiligen GDL-Struktur berechnet. So kann eine theoretisch konstruierte HT-PEFC simuliert werden, in der die GDL fehlt ohne weitere geometrische Veränderung, sodass der Unterschied der Querströmung mit und ohne GDL simuliert werden kann. In der realen HT-PEFC sähe eine Konstruktion ohne GDL anders aus, da durch den nötigen Anpressdruck die Bipolarplatte direkt auf der Elektrode aufliegen würde. Für den leeren Kanal erhält man bei gleichen Randbedingungen aufgrund der fehlenden Struktur einen niedrigeren Gesamt-Massenstrom. Dieser ist jeweils an den der GDL-Materialien angepasst, um die Daten sinnvoll mit den GDL-Strukturen vergleichen zu können.

Für die folgenden Betrachtungen ist die Verteilung in  $z$ -Richtung unwichtig, da Erkenntnisse entlang des Kanal-Steg-Übergangs gewonnen werden sollen. Daher wird der Mittelwert von  $v_x$  über alle  $z$  für jeden  $y$ -Punkt auf der Elektroden- und Kanal-Seite berechnet und somit eine Verteilung  $\bar{v}_x^{\text{line}}$  über  $y$  also entlang des Kanal-Steg-Übergangs generiert. Es sollen damit die folgenden Aspekte untersucht werden:

1. Der Unterschied zwischen einem Kanal-Steg-Szenario mit und ohne (unkomprimierter) GDL an der Elektrode.
2. Die Homogenitätsanalyse der Elektroden- und Kanal-Seite für die unterschiedlichen Kompressionsstufen der GDL.

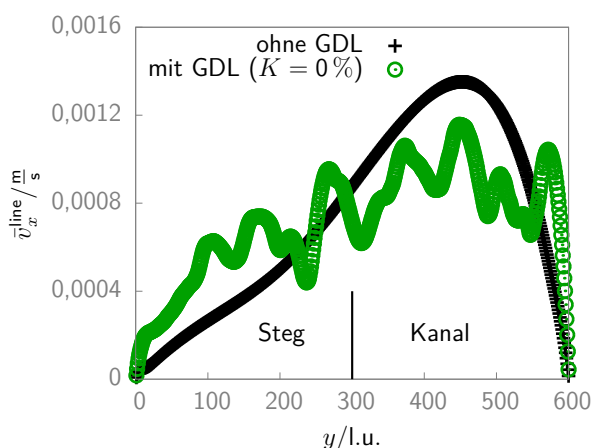


Abbildung 5.26.: Vergleich der Kanal-Steg-Geometrie  $\alpha$  mit und ohne unkomprimierter GDL. Aufgetragen ist der Geschwindigkeits-Mittelwert  $\bar{v}_x^{line}$  über  $y$  an der Elektrode.

### 3. Die Ausbreitung des Gases zwischen Kanal und Elektrode mit und ohne GDL.

In Abbildung 5.26 ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten  $v_x$  entlang des Kanal-Steg-Übergangs  $y$  für die Elektrodenschicht gezeigt. Die Kurve der unkomprimierten GDL fluktuiert stark, während der Verlauf für den leeren Kanal keinen nennenswerten Schwankungen unterliegt. Die lokalen Schwankungen für die  $yz$ -Ebene sind einerseits abhängig von der Struktur der Ebene, andererseits von denen der vorherigen und nachfolgenden Schichten. Für stochastisch äquivalente Geometrien können diese Schwankungen völlig unterschiedliche Ausprägungen haben. Die Höhe der Schwankungen ist ein Maß für die Streuung der Mittelwerte und damit charakteristisch für das stochastische Verhalten des Materials. Um eine homogene Verteilung an der Elektrode zu gewährleisten, ist im Mittel nicht das stochastische Verhalten, sondern der generelle Trend der Kurven von Bedeutung. Die Kurve des leeren Kanals hat ein charakteristisches Maximum, das dem eines Hagen-Poiseuille-Profiles ähnelt, wie für den leeren Kanal in Kapitel 5.1 eingehend untersucht. Das Problem, das ohne GDL auftritt, ist hier deutlich zu erkennen. Obwohl das Gas also bereits einen leeren Kanal mit einer Länge im Bereich der GDL-Dicke durchschritten hat, gibt es keinen nennenswerten Massentransport unter den Steg. Ein direkter Vergleich mit der GDL verdeutlicht den Vorteil, den die poröse Schicht mit sich bringt: Eine deutlich homogenere Versorgung der Elektrode ist zu erkennen. Die Mittelwerte unter dem Steg sind größer und die unter dem Kanal kleiner als für den Fall des leeren Kanals. Trotz der starken Fluktuationen, die eine Folge des stochastischen Materials sind, ist festzuhalten, dass die unkomprimierte GDL die Gasströmung unter dem Steg entscheidend verbessert. Am Rand fallen beide Kurven in Abbildung 5.26 sehr stark ab. Dafür ist der Einfluss der Bounce-Back-Bedingung am Rand verantwortlich. Dabei ist zu beachten, dass die non-slip-Randbedingung sich auf die gesamte Randumgebung auswirkt. In der schematischen Skizze in Abbildung 5.27 wird dies deutlich. Unter der Annahme, dass das reale Profil entlang der gestrichelten Linie verläuft, erzwingt die non-slip-Randbedingung auf beiden Seiten des simulierten (grünen) Bereichs die Geschwindigkeit null und damit als Ergebnis eine niedrigere Geschwindigkeit in der Nähe des Randbereichs als eigentlich in der Brennstoffzelle zu erwarten.

Der Einfluss der Kompression soll zunächst in einem Vergleich des unkomprimierten Kanal-Steg-Szenarios mit der maximal komprimierten GDL in Abbildung 5.28a diskutiert werden. Zu sehen sind zwei Kurven, deren stochastische Schwankungen dieselben Ausprägungen haben,

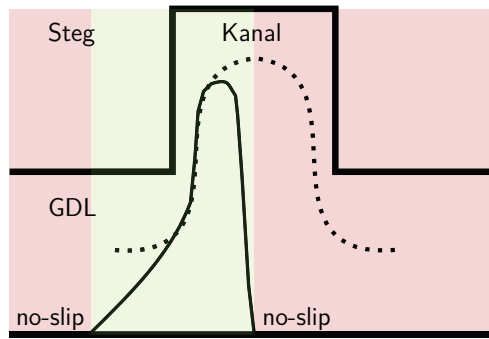
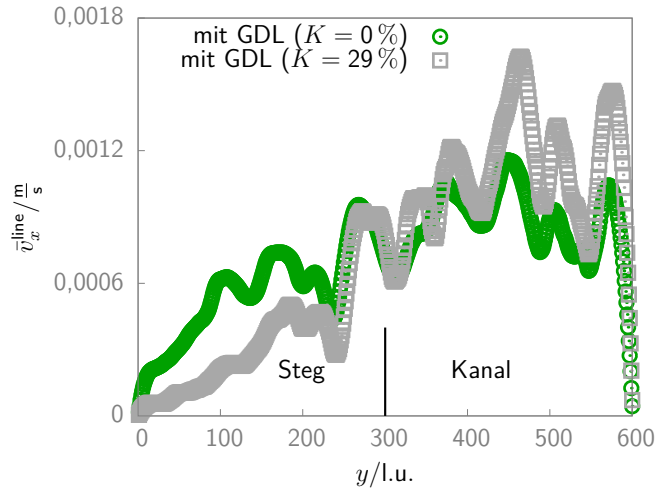


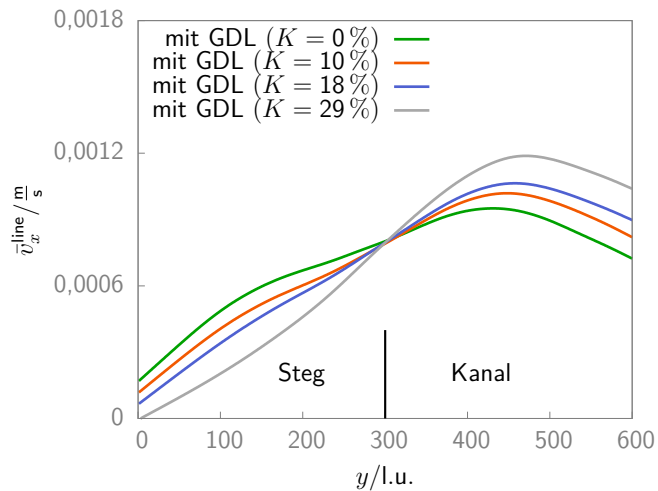
Abbildung 5.27.: Schema, wie sich die non-slip-Randbedingungen auf ein Geschwindigkeits-Profil in einem simulierten (grünen) Bereich in der GDL auswirkt. Die gestrichelte Linie stellt einen möglichen Verlauf des Profils dar und die durchgezogene Linie den simulierten Verlauf.

während im generellen Trend die Homogenität für das komprimierte Material abnimmt. Der erste Punkt zeigt also, dass sich die Poren-Faser-Struktur mit der Kompression des Materials nicht wesentlich verändert und somit ähnliche lokale Maxima und Minima entstehen. Die Versorgung der Elektrode hingegen wird für das komprimierte Material schlechter sein als für das unkomprimierte. Für die Kompression gilt: Die verdichtete Faserstruktur unter dem Steg führt zu einer unterdurchschnittlichen Versorgung und die größeren Hohlräume unter dem Kanal zu einer überdurchschnittlichen Versorgung der Elektrode. Zwischen Kanal und Elektrode liegt somit ein Übergangsbereich, in dem die Faserdichte und die Gasströmung für komprimiertes und unkomprimiertes Material gleich sind. Für diese Betrachtung sollen die stochastischen Schwankungen unterdrückt werden, da sie den generellen Trend der Kurven verdecken. Daher wird mit natürlichen kubischen Splines [127] eine Gewichtungsfunktion an die Daten in Abbildung 5.28a gefittet. In Abbildung 5.28b sind zusätzlich zu den Kurven der Abbildung 5.28a auch die Simulationsergebnisse für  $K = 10\%$  und  $K = 20\%$  gezeigt. Der generelle Trend aus Abbildung 5.28a bestätigt sich. Durch die Kompression verliert die Gasverteilung auf der Elektrodenseite an Homogenität. Der Einfluss der Hafttrandbedingungen verhält sich für alle Kurven ähnlich: Die Geschwindigkeiten fallen in Richtung des Randes ab, wie anhand von Abbildung 5.27 erklärt. Unter dem Steg ist der Trend der Kurven für die verschiedenen Kompressionsstufen unterschiedlich. Vergleicht man die Höhe der Linien, fällt auf, dass trotz der gleichmäßigen Stufen in der Komprimierung kein gleichmäßiger Abstand zwischen ihnen zu erkennen ist. Obwohl sich dieses Ergebnis nicht quantifizieren lässt, da nur Realdaten für vier Kompressionsstufen zur Verfügung stehen, soll als qualitatives Ergebnis festgehalten werden, dass die Komprimierung nicht linear mit der Gasversorgung der Elektrode einhergeht. Eine Einschätzung, bis zu welcher Kompressionsstufe eine GDL Vorteile gegenüber der (theoretischen) Brennstoffzelle ohne GDL hat, ist unter anderem im letzten Diskussionspunkt dieses Abschnittes enthalten.

Die Versorgung der Elektrodenschicht ist auch von der Dicke der Struktur zwischen Kanal und Elektrode abhängig. Die bisherigen Profile der Elektrodenschichten würden sich demnach anders verhalten, wenn die Dicke, die hier durch das reale Material vorgegeben ist, variiert würde. Die entscheidende Eigenschaft der GDL ist demnach, wie schnell sich das Profil unter dem Steg ausbreitet. Bisher wurde jeweils die Elektrodenseite des GDL-Materials betrachtet, also die letzte Schicht der GDL, bevor das Gas in den Nachlauf strömt. Um die Ausbreitung des Gases von der Kanalseite bis zur Elektrode zu verfolgen, sollen die Profile für drei Schichten in



(a) Vergleich der Daten



(b) Vergleich der Splines

Abbildung 5.28.: Vergleich der Elektrodenschicht einer Kanal-Steg-Geometrie für verschiedene Kompressionsstufen. Aufgetragen ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten  $\bar{v}_x^{\text{line}}$  über  $y$  an der Elektrode. In Abbildung 5.28a ist eine unkomprimierte GDL mit einer zu  $K = 29\%$  komprimierten GDL verglichen. Abbildung 5.28b zeigt die Spline-Funktionen von vier verschiedenen Kompressionsstufen.

$x$ -Richtung verglichen werden:

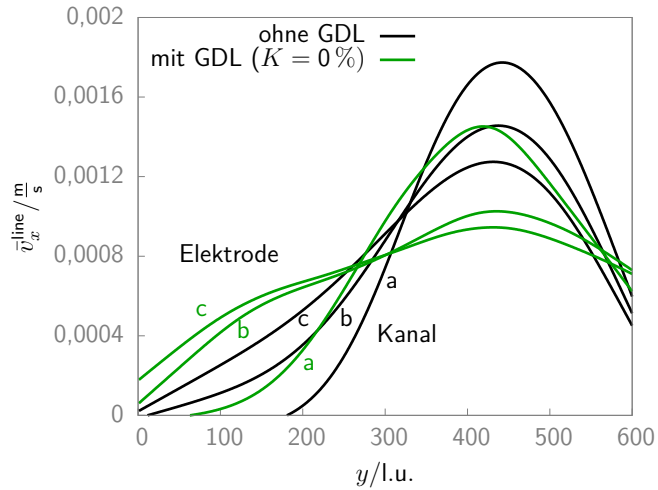
- a) **Kanalseite:** erste Schicht, nachdem das Gas den Steg passiert hat
- b) **Kanalmitte:** Mitte zwischen a) und c)
- c) **Elektrodenseite:** letzte Schicht der GDL, bevor der Nachlauf beginnt

Um die Qualität des Gastransports der GDL jeweils einschätzen zu können, wird als Vergleich das jeweilige Profil für dieselbe Simulation ohne GDL betrachtet. Auch hier werden erneut kubische Splines zur Darstellung verwendet. Es ist zu beachten, dass die Dicke der GDL mit zunehmender Kompression geringer wird und sich aus diesem Grunde das Profil für  $K = 0\%$  von dem mit  $K = 29\%$  unterscheidet. Was für die Elektrodenschicht bereits gezeigt wurde, bestätigt sich auch in Abbildung 5.29a deutlich: Jede der Schichten für die unkomprimierte GDL sorgt für eine homogenere Versorgung der Elektrode, als die des leeren Kanals. Schon in der Schicht a) ist die Versorgung wesentlich besser. Der Grund dafür sind die Fasern, die auch im unkomprimierten Material in den Steg hineinragen (vergleiche Abbildung 5.24). Besonders interessant in Abbildung 5.29a ist das Profil b) der Kanalmitte. Für den leeren Kanal liegt es in der Mitte zwischen a) und c), während sich für die GDL schon fast das Profil ausgebildet hat, welches auch in c) zu beobachten ist. Aus dieser Beschreibung ist zu erkennen, was die GDL im Vergleich mit einem leeren Kanal bewirkt: Das Gas verbreitet sich aus geometrischer Sicht schneller unter dem Steg (die bloße Eigenschaft des Quertransports kann man den meisten Materialien zuschreiben). Wie schon in Abbildung 5.29a zu vermuten, bestätigt sich bei der Analyse weiterer Schichten, dass die Annäherung an das Endprofil der Elektrodenseite nicht linear erfolgt. Das Profil ändert sich demnach ab einer bestimmten Schichtdicke nur noch gering, auch wenn beim theoretischen Konstrukt einer unendlichen Schichtdicke keine Abhängigkeit von  $y$  mehr zu erwarten wäre. Rückblickend heißt das in Bezug auf die Abbildung 5.28b, dass der Einfluss der dort durch die Komprimierung verwendeten unterschiedlichen Schichtdicken gering ist und ein ähnliches Verhalten für gleiche Schichtdicken zu erwarten wäre. Unabhängig davon wurde der hier gewählte Ansatz unterschiedliche Schichtdicken zu betrachten bewusst gewählt, da er die Realität am besten abbildet.

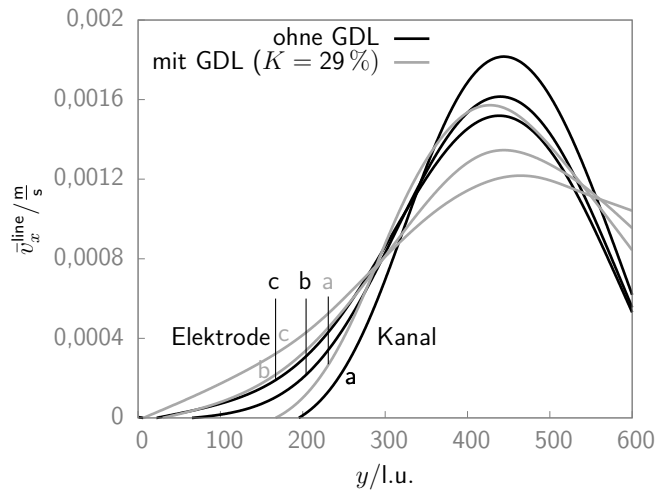
Abbildung 5.29b vergleicht die mit 29% komprimierte GDL mit dem leeren Kanal. Wie erwartet ist ein deutlicher Unterschied zum unkomprimierten Fall ersichtlich und die Versorgung der Elektrode durchweg schlechter. Dennoch ist eine leicht bessere Versorgung als im leeren Kanal erkennbar. Dies wird bereits in der obersten Schicht deutlich, was durch die für diese Kompressionsstufe zahlreichen Fasern verursacht wird, die in den Kanal hineinragen. Im Gegensatz zu Abbildung 5.29a zeigt der Übergang der Profile a) zu b) keinen signifikanten Unterschied, der ausdrückt, dass der leere Kanal oder die GDL-Struktur für eine schnellere Querströmung unter den Steg sorgt. Demnach sorgt die Kompression der GDL mit 29% dafür, dass sie bei der Versorgung der Elektrode mit Gas nur noch über leichte Vorteile gegenüber einer hypothetischen Brennstoffzelle ohne GDL verfügt. Ein wichtiges Ergebnis ist auch, dass ab einer Komprimierungsstufe, die in etwa in diesem Bereich liegt, der Übergang zur schlechteren Versorgung durch die komprimierte GDL stattfindet. Somit lassen sich die wesentlichen Aussagen zur Strömungen in der Kanal-Steg-Geometrie wie folgt zusammenfassen:

- Die unkomprimierte Gasdiffusionsschicht verbessert die Homogenität der Gasversorgung an der Elektrode in der Brennstoffzelle. Die lokalen Schwankungen entstehen durch den stochastischen Einfluss der Struktur, die globalen durch die Anströmung und Komprimierung.





(a) Vergleich ohne und mit unkomprimierter GDL



(b) Vergleich ohne und mit 29% komprimierter GDL

Abbildung 5.29.: Vergleich von drei Schichten entlang der Flussrichtung einer Kanal-Steg-Geometrie mit und ohne GDL. Aufgetragen ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten  $\bar{v}_x^{\text{line}}$  über  $y$  an den Punkten a) Kanalseite, b) Mitte c) Elektrodenseite. In Abbildung 5.29a ist die GDL zu null Prozent, in Abbildung 5.29b zu 29 % komprimiert. Anstelle der einzelnen Wertepaare sind mit natürlichen kubischen Splines jeweils Gewichtungsfunktionen aufgetragen.

- Die Kompression der GDL derselben Geometrie führt zu einer schlechteren Versorgung der Elektrode unter dem Steg. Die Stärke der Kompression korreliert nicht linear mit der Gasversorgung.
- Die Gasströmung einer komprimierten GDL ist der eines leeren Kanals bis zu einem Kompressionsgrad von etwa 30 % überlegen. Dies gilt sowohl für die Homogenität, die sich für ähnliche Schichtdicken einstellt, als auch für den Weg, den das Gas benötigt, um in dem jeweiligen Material das Profil auszubilden.



## 6. Mehrkomponenten-Modell

In diesem Kapitel soll die Mehrkomponenten-Strömung in verschiedenen Geometrien untersucht werden. Zunächst wird in Abschnitt 6.1 eine generelle Einordnung in die Mehrkomponenten-Diffusion im Rahmen des LB-Algorithmus gegeben. Anschließend wird in Kapitel 6.2 im Vergleich eines leeren Kanals mit einer GDL-Struktur die LB-Mehrkomponenten-Strömung in der GDL validiert. In Kapitel 6.3 wird sie angewendet auf unterschiedliche Stromdichten in der HT-PEFC, die unterschiedlichen Betriebspunkten entsprechen.

### 6.1. Konvektion und Diffusion des LB-Algorithmus

In Kapitel 3.3.3 wurde der prinzipielle Unterschied zwischen diffusivem und konvektivem Gastransport beschrieben. Konvektion ist ein allgemeiner Massentransport des Gases oder Gemischs aufgrund einer äußeren Kraft. Die Diffusion beschreibt eine thermische Bewegung von Molekülen, die sich statistisch entlang von Konzentrationsgradienten bewegt. Für die bisher betrachteten Einkomponenten-Strömungen ist die Wärmebewegung der Teilchen aus makroskopischer Sicht zu vernachlässigen, da im Mittel dadurch kein Stofftransport entsteht. In diesem Zweikomponenten-Kapitel werden zusätzlich auch diffusive Effekte betrachtet.

Auf molekularer Ebene ist die Unterscheidung zwischen Konvektion und Diffusion zunächst nicht sinnvoll. Ob die kinetische Energie des Teilchens aus seiner Wärmebewegung oder aus einer äußeren Kraft entsteht, der alle anderen Teilchen auch ausgesetzt sind, ist auf dieser Ebene nicht zu unterscheiden. Der mesoskopische LB-Algorithmus berücksichtigt sowohl die thermische Geschwindigkeit als auch die Schwerpunktgeschwindigkeit des Systems. Für die Mehrkomponenten-Strömung wird das SC-Modell ohne äußere Kräfte verwendet, wie in Kapitel 3.5.3 beschrieben. In Kapitel 3.6 wurde für eine Komponente erklärt, dass die stochastische Verteilung der Moleküle, die im Algorithmus verwendet wird, auf der Maxwell-Verteilung für bewegte Systeme beruht. Sowohl die Wärmebewegung als auch die konvektive Bewegung sind daher durch den Algorithmus intrinsisch erfasst.

Um die Konvektion und die Diffusion im LB-Algorithmus zu vergleichen, soll die Strömung der Brennstoffzelle diskutiert werden. Im stromlosen Zustand ist die gesamte Kathodenseite der HT-PEFC mit Luft (Kathode) beziehungsweise Wasserstoff (Anode) gefüllt. Im Betrieb stellt sich abhängig von der Stromdichte  $J$  ein Druckgradient zwischen Gaskanal und Elektrode ein. Je nachdem, welches Szenario man betrachtet, erhält man unterschiedliche Strömungsprobleme:

- a) **Konvektion - Anodenseite:** Dieses Szenario wurde in Kapitel 5 untersucht. Der Druckgradient von Wasserstoff zwischen Kanal und Elektrode bewirkt einen konvektiven Stofftransport durch die GDL. Die Druck oder Geschwindigkeitsdifferenzen stellen sich gemäß Gleichung (5.1) ein.
- b) **Diffusion - Kathodenseite:** Eine Sauerstoff-Konzentrationsdifferenz bewirkt einen Massenstrom für die erste Komponente in Richtung der Elektrode. Dort wird gasförmiges Wasser gebildet, welches aufgrund der Konzentrationsdifferenz in Gegenrichtung diffundiert. Im

einfachsten Modell kompensieren sich die Partialdrücke der beiden Komponenten so, dass der Gesamtdruck und damit auch die Gesamtgeschwindigkeit des Gemischs entlang der Hauptfließrichtung konstant ist. In diesem Fall ist gemäß Gleichung (3.47) die Geschwindigkeit der Komponenten  $\vec{v}_\sigma$  jeweils die Diffusionsgeschwindigkeit des Gases.

- c) **Diffusion + Konvektion - Kathodenseite:** Wenn an der Elektrode, wie in Fall b) beschrieben, Sauerstoff zu Wasserdampf umgesetzt wird, entstehen aus einem Sauerstoffmolekül zwei Wassermoleküle (nicht volumenbeständige Reaktion). Die Molekülmassen verringern sich dabei von 32 u auf 18 u. Die Reaktion zu Wasserdampf führt zu einem höheren Partialdruckgradienten zwischen Elektrode und Kanal als durch den Sauerstoff in Gegenrichtung. Zusätzlich zur Diffusion wie in b) entsteht dadurch ein konvektiver Massentransport des Gemischs, eine Überlagerung von Diffusion und Konvektion.

Das Profil im einkomponentigen Stofftransport bildet sich zum Beispiel im leeren Kanal aufgrund der non-slip-Bedingung am Seitenrand der Strömung aus. Es wurde gezeigt, dass sich so gemäß Gleichung (5.1), je nach Ein- und Auslassbedingung, die Geschwindigkeit oder die Druckdifferenz im Kanal einstellt. Im Mehrkomponenten-Modell wirken die Randbedingungen in derselben Form auf die Komponenten, also zum Beispiel auf die Partialdruckgradienten. Dies stellt ein Problem dar, weil sich im Mehrkomponenten-Fall in der Realität eine andere Abhängigkeit vorfindet, nämlich das Fick'sche Gesetz der Diffusion in Gleichung (3.48), in dem der Partialdruckgradient sich anders verhält als für ein einzelne Komponente. Der wesentliche Unterschied ist, dass die Diffusionsgeschwindigkeit unabhängig ist vom Querschnitt und daher im Allgemeinen nicht mit der makroskopischen Geschwindigkeit aufgrund der Haftbedingung identisch ist. Die Haftbedingungen wirken sich also fälschlicherweise auf die Partialdrücke aus und führen dazu, dass die Diffusionsgeschwindigkeit, die eigentlich konstant bleiben sollte, abhängig ist vom angelegten Kanalquerschnitt. Daraus folgt, dass in einem Kanal mit beliebigem Querschnitt  $A$  der Massenstrom, der sich entlang des Partialdruckgradienten einstellt, nicht dem entspricht, wie es das Fick'sche Gesetz beschreibt. Dies ist eine Folge davon, dass die verwendeten Randbedingungen es nicht erlauben, den Massenstrom an einer Seite des Simulationsmodells unabhängig einzustellen, sondern sich dieser durch die Haftbedingungen getrieben einstellt. Um den korrekten Massenstrom zu kalibrieren, wird im nächsten Abschnitt der Fall b) betrachtet, in dem die gesamte Strömung auf Partialdruckdifferenzen beruht und der Druckgradient des Gemisches null ist. Die Kalibrierung erfolgt, indem der Querschnitt des Kanals so angepasst wird, dass der Massenfluss sich entsprechend dem Fick'schen Gesetz einstellt.

## 6.2. Validierung im leeren Kanal

Zunächst wird ein leerer Kanal mit den Abmessungen 200 l.u.  $\times$  300 l.u.  $\times$  300 l.u. (entspricht 350  $\mu\text{m}$   $\times$  526  $\mu\text{m}$   $\times$  526  $\mu\text{m}$ ) bei einer Gitterauflösung von 1,752  $\mu\text{m}$  betrachtet. Die schematische Darstellung dieser Simulation ist in Abbildung 6.1 gezeigt. Sie entspricht dem Ausschnitt III in der Abbildung 2.1 für den hypothetischen leeren Kanal ohne GDL. Die Berechnung des Druckgradienten für die erste Komponente (Sauerstoff) erfolgt über das Fick'sche Gesetz in Gleichung (3.48) und ist in Tabelle 6.1 zu sehen.

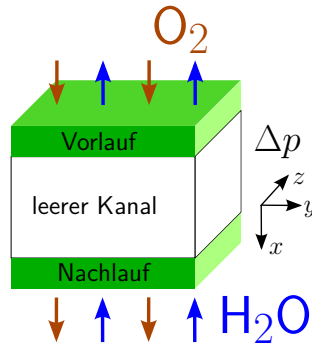


Abbildung 6.1.: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Ein rechteckiger leerer Kanal wird mit Sauerstoff und Wasserdampf durchströmt. Für Wasserdampf ist eine Druck-Randbedingung in eine Richtung angelegt, für Sauerstoff in die andere. An den Seitenrändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt.

Tabelle 6.1.: Übersicht der Eingangsparameter für die Gasströmung an Anode und Kathode der HT-PEFC. Als Betriebstemperatur wird 160 °C angenommen. Die Stoffwerte sind aus [32].

		Sauerstoff			Wasserdampf		
$\eta_\sigma$	in $\mu\text{Pa s}$	27,0	27,0	27,0	14,2	14,2	14,2
$\varrho_\sigma$	in $\text{kg m}^{-3}$	0,9	0,9	0,9	0,5	0,5	0,5
$J$	in $\text{A cm}^{-2}$	0,2	0,5	0,8	0,2	0,5	0,8
$\Delta\varrho_\sigma$	in $\text{g m}^{-3}$	0,4	1,0	1,7	0,5	1,2	1,9
$v_\sigma$	in $\text{mm s}^{-1}$	0,2	0,5	0,7	0,4	0,9	1,4

Wie in Kapitel 3.3.2 wird dabei der Massenstrom über das Faraday'sche Gesetz ermittelt, entspricht also dem Umsatz an der Elektrode. Zunächst wird mit einer Stromdichte von  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  simuliert. Zur Validierung soll zunächst im Fall b) angenommen werden, dass die zweite Komponente (Wasserdampf) denselben Druckgradienten in Gegenrichtung erfährt und das Gemisch so keinem Druckgradienten ausgesetzt ist.

Wie in Kapitel 6.1 erklärt, ist der Nachteil der Randbedingungen, dass der Massenstrom nicht unabhängig variiert werden kann und sich die Komponenten gemäß Gleichung (3.48) verhalten. Daher wird durch die Variation des Querschnittes  $A$  in Gleichung (3.48) der Massenstrom eingestellt, der dem korrekten Diffusionskoeffizienten für Sauerstoff in Wasserdampf bei einer Temperatur von 160 °C entspricht. Dies geschieht durch eine lineare Ausgleichsrechnung. Die Berechnung des Diffusionskoeffizienten  $D$  zwischen den zwei Komponenten erfolgt durch die Stefan-Maxwell-Gleichung [113]

$$0 = -\Delta p_1 - \frac{\chi_1 \chi_2}{\vec{v}_2 - \vec{v}_1} D \quad , \quad (6.1)$$

eine allgemeine Version des Fick'schen Gesetzes, welche die Diffusion von Multikomponenten-Gasströmung beschreibt. Dabei ist  $p$  der Gesamtdruck,  $p_\sigma$  die Partialdrücke der Komponenten und  $\chi_\sigma = p_\sigma/p$  der Stöchiometriefaktor für ideale Gase. Die Geschwindigkeit der Komponenten  $\vec{v}_\sigma$  ist mit der Diffusionsgeschwindigkeit identisch, da für die Gesamtgeschwindigkeit des Gases

$\vec{v}_{\text{Gem}}$  in Gleichung (3.47) null angenommen wurde. Der Diffusionskoeffizient entspricht, für den hier betrachteten Fall eines idealen Gasgemischs ohne Fernwechselwirkung, dem des Fick'schen Gesetzes. Der vorgegebene Diffusionskoeffizient ist der von Sauerstoff in Wasserdampf bei  $T = 160^\circ\text{C}$ :  $D = 5,3 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  [128].

Zur Validierung der Methode wird der Diffusionskoeffizient des leeren Kanals mit dem in der GDL verglichen. Das Schema der Simulation ist in Abbildung 6.2 gezeigt. Hier ist, wie in Ausschnitt III der Abbildung 2.1 dargestellt, die GDL mit berücksichtigt.

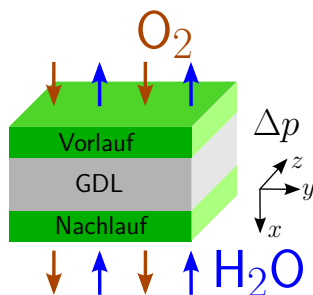


Abbildung 6.2.: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Eine GDL wird mit Sauerstoff und Wasserdampf durchströmt. Für Wasserdampf ist eine Druck-Randbedingung in eine Richtung angelegt, für Sauerstoff in die andere. An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt.

Gemäß Gleichung (3.49) hängt der effektive Diffusionskoeffizient eines Gasgemischs von der Porosität und der Tortuosität des durchströmten porösen Materials ab. Der Massenstrom der Gasströmung durch die GDL wird auf den des leeren Kanals normiert und der simulierte Diffusionskoeffizient mit dem des leeren Kanals verglichen. Die Simulation wurde für einen Vorlauf/Nachlauf von je 30 l.u. ( $53 \mu\text{m}$ ) sowie einen Vorlauf/Nachlauf von je 50 l.u. ( $88 \mu\text{m}$ ) durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.2 zusammengefasst bei einer simulierten Tortuosität von  $\tau = 1,15$  und einer Porosität von  $\Phi = 0,76$ . Die Berechnung des Diffusionskoeffizienten für den leeren Kanal bezieht sich zur Vergleichbarkeit auf den Bereich des Kanals mit GDL ohne Vorlauf. Der Diffusionskoeffizient des gesamten leeren Kanals inklusive Vorlauf entspricht dem von Sauerstoff in Wasserdampf, wie zuvor kalibriert.

Tabelle 6.2.: Vergleich der Diffusionskoeffizienten für den leeren Kanal (Zeile 1) und dem daraus errechneten effektivem Diffusionskoeffizienten (Zeile 2) mit  $\Phi/\tau = 0,66$ . Die dritte Zeile gibt den über Gleichung (6.1) aus der Simulation berechneten Diffusionskoeffizienten an.

	$D_{\text{Vorlauf, 30}}$	$D_{\text{Vorlauf, 50}}$
	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
<b>leer</b>	$8,5 \times 10^{-5}$	$10,6 \times 10^{-5}$
<b>effektiv, berechnet</b>	$5,6 \times 10^{-5}$	$7,0 \times 10^{-5}$
<b>effektiv, simuliert</b>	$7,3 \times 10^{-5}$	$7,3 \times 10^{-5}$

Das Ergebnis zeigt eine Abweichung von 30 % für einen Vorlauf/Nachlauf von 30 l.u. und eine sehr gute Übereinstimmung für den Vorlauf/Nachlauf von 50 l.u. mit einer Abweichung von

3 %. Hierbei ist wie in Kapitel 5.2.3 zu beobachten, dass sich im Vorlauf des leeren Kanals das sich einstellende Profil wesentlich drastischer ändert als im Vorlauf der GDL-Struktur. Zusammenfassend ist demnach festzuhalten, dass die äußeren Randbedingungen des LB-Algorithmus erfolgreich so eingestellt werden konnten, dass sie sich dem Fick'schen Gesetz entsprechend verhalten: Der Algorithmus konnte mit Erfolg den dazu relativen Diffusionskoeffizienten der porösen GDL-Struktur abbilden. Nachdem bereits in Kapitel 5.1.2 der konvektive Stofftransport erfolgreich validiert werden konnte, ist dies nun auch für die diffusive Strömungen für zwei Komponenten gelungen. Eine Überlagerung von konvektiver und diffusiver Strömung erfolgt additiv (vergleiche Gleichung (3.47)), sodass der Fall c) in Kapitel 6.1 ebenfalls beschrieben werden kann. Unabhängig davon muss der Massenstrom jeweils an den Basisfall angepasst werden. Im folgenden Abschnitt wird dies genutzt, um eine Mehrkomponenten-Strömung für ein Kanal-Steg-Szenario in der HT-PEFC zu untersuchen.

### 6.3. Kanal-Steg-Szenario

Die im Folgenden verwendete Geometrie ist ein Kanal-Steg-Szenario für die unkomprimierte Geometrie  $\beta$  II. Die Abmessungen der Geometrie bleibt so wie im vorherigen Kapitel, lediglich der Vorlauf ist gemäß Abbildung 6.3 nun in einen Stegbereich und einen Kanalbereich eingeteilt. Dieser Ausschnitt entspricht IV in Abbildung 2.1.

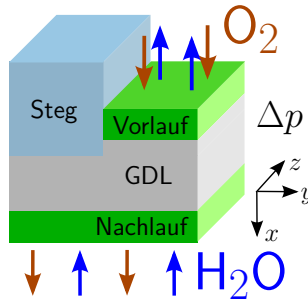


Abbildung 6.3.: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Der Kanal-Steg-Übergang einer GDL wird mit Sauerstoff in Richtung Elektrode und Wasserdampf in Richtung Kanal durchströmt. Ein Druckgradient ist jeweils in Strömungsrichtung vorgegeben, der sich an einem typischen Massenstrom einer HT-PEFC orientiert. An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt.

Der Einlauf des Sauerstoffs erstreckt sich demnach über den halben Querschnitt, während er an der Elektrode über den gesamten Querschnitt ausströmt. Für den Wasserdampf ist dies umgekehrt. Als Randbedingung wird erneut ein Druckgradient angelegt. Für die zweite Komponente (Wasserdampf) wird der Druckgradient gemäß Tabelle 6.1 angenommen, die demselben Betriebspunkt der HT-PEFC wie die erste Komponente entspricht. Die resultierenden Partialdrücke unterscheiden sich, da die Stoffe verschieden sind. Damit entsteht ein Massentransport des Gemischs, sodass in der Strömung konvektive und diffusive Beiträge vorhanden sind (Fall c) in Kapitel 6.1). Über die Pécletzahl [110, S. 600] kann abgeschätzt werden, ob der diffusive oder der konvektive Anteil in der Strömung überwiegt. Sie beschreibt das Verhältnis vom konvektiven zum diffusiven Stofftransport und ist wie folgt definiert:

$$Pe = \frac{L_{ch} v_{ref}}{D} \quad . \quad (6.2)$$



Aus Tabelle 6.1 ergibt sich für die Gemische eine Referenz-Gesamtgeschwindigkeit von höchstens  $v_{\text{ref}} = 0,7 \text{ m s}^{-1}$ . Mit einer charakteristischen Länge  $L_{\text{ch}} \sim 5 \mu\text{m}$  und dem Diffusionskoeffizienten von Sauerstoff in Wasserdampf erhält man Pécletzahlen von  $\sim 10^{-5}$  für die betrachtete Strömung. Somit überwiegt der diffusive Anteil im Nenner der Gleichung (6.2), sodass der konvektive Stofftransport vernachlässigt werden kann.

Bisher wurde in allen Simulationen jeweils eine Stromdichte von  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  angenommen. In der HT-PEFC ist dies ein plausibler Wert für einen mittleren Betriebspunkt. Prinzipiell sind weitere Betriebsbereiche der HT-PEFC denkbar, wie in Kapitel 3.3.1 erklärt. Zudem ist der Umsatz an der Elektrode nicht einheitlich. Aufgrund des Druckgradienten entlang der Gaskanäle in der Bipolarplatte, der bisher als null angenommen wurde, und der unterschiedlichen Gaszusammensetzung für den Einlass und Auslass der Bipolarplatte, treten entlang der Elektrode unterschiedliche Stromdichten auf. Um diesen Aspekten Rechnung zu tragen, sollen für das Kanal-Steg-Szenario die drei Stromdichten  $J = 0,2 \text{ A cm}^{-2}$ ,  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  und  $J = 0,8 \text{ A cm}^{-2}$  für verschiedene Betriebspunkte der HT-PEFC simuliert werden. Die sich daraus ergebenden Eingangsparameter sind in Tabelle 6.1 zu sehen. Der Druckgradient für Wasserdampf wird im Gegensatz zum Kapitel 6.2 nicht als identisch zu der von Sauerstoff angenommen, sondern errechnet sich ebenfalls aus dem Fick'schen Gesetz mit einem Massenstrom, der sich an der jeweiligen Stromdichte über das Faraday'sche Gesetz orientiert. Der Diffusionskoeffizient, der im Fick'schen Gesetz angenommen wird, ist der im vorherigen Kapitel bestimmte effektive Diffusionskoeffizient für das durchströmte Material. Der Druckgradient von Wasserdampf ist für alle Stromdichten etwas höher als der von Sauerstoff. Während das Sauerstoffmolekül eine Molmasse von  $32 \text{ g mol}^{-1}$  aufweist, gilt für die zwei pro Sauerstoffmolekül an der Elektrode produzierten Wassermoleküle eine Molmasse von je  $18 \text{ g mol}^{-1}$ . Aus dem etwas größeren Massenstrom ergibt sich dann über das Fick'sche Gesetz der etwas höhere Druckgradient für Wasserdampf. Das Gemisch hat also in diesem Fall einen Konzentrationsgradienten in Richtung Gaskanal.

Wie in Kapitel 5.5.2 wird die oberste GDL-Schicht auf der Elektrodenseite der Geometrie analysiert. Es werden auch hier erneut die Beträge der Mittelwerte über die Strömungsgeschwindigkeiten  $v_x$  für jedes  $y$  entlang des Kanal-Steg-Übergangs aufgetragen. Zunächst wird in Abbildung 6.4 die Verteilung des zur Elektrode strömenden Sauerstoffs mit dem Wasserdampf, der in Gegenrichtung strömt, verglichen. Wie durch den vorgegebenen Druckgradienten aus Tabelle 6.1 zu erwarten, ist die Kurve von Wasserdampf insgesamt höher als die von Sauerstoff. Zudem ist eine Kopplung zwischen den beiden Komponenten zu erkennen, da der Verlauf der Kurven sehr ähnlich ist. Außerdem scheint für Wasserdampf der Druckgradient am Kanal bereits einen Einfluss auf den Verlauf auf der Elektrodenseite zu haben, da die Inhomogenität aufgrund des Kanal-Steg-Übergang hier bereits deutlich wird.

In der Abbildung 6.5 sind die drei Stromdichten für Sauerstoff in Abbildung 6.5a und für Wasserdampf in Abbildung 6.5b verglichen. Ganz deutlich ist der Einfluss des höheren Druckgradienten, die mit der Stromdichte korreliert und zu höheren Geschwindigkeiten führt<sup>1</sup>. Dabei wirkt sich wie für die unterschiedlichen Komponenten ein höherer Druckunterschied auf die Höhe der Kurven aus. Für die Homogenität der Elektrodenversorgung bedeutet dies, dass die relative Versorgung der Elektrode nicht von der Stromdichte abhängt. Eine doppelte Geschwindigkeit unter dem Steg bedeutet eine doppelte Geschwindigkeit unter dem Kanal. Diese Skalierung kann allerdings dazu führen, dass für eventuell vereinzelt auftretende, hohe Stromdichten die Gasversorgung unter dem Kanal zu sehr hohen absoluten Werten führt.

<sup>1</sup>Die Geschwindigkeiten entsprechen nicht den absoluten Geschwindigkeiten in Tabelle 6.1 aufgrund der erwähnten Anpassung des Massenstroms. Zudem wurde, wie in Kapitel 3.4.4 erklärt, die Geschwindigkeit bei gleicher Reynoldszahl aus numerischen Gründen verändert. Auf die relativen Aussagen hat dies keinen Einfluss.

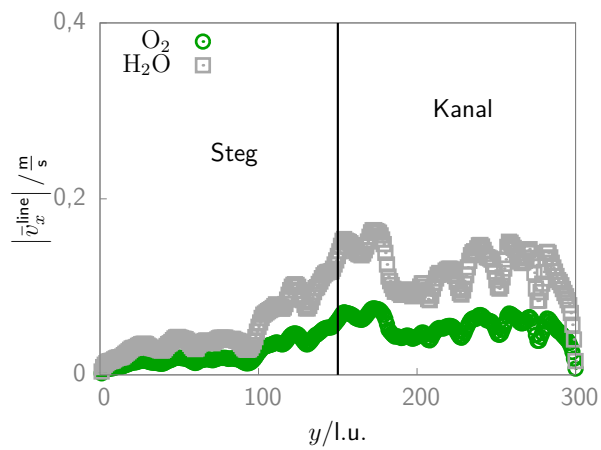
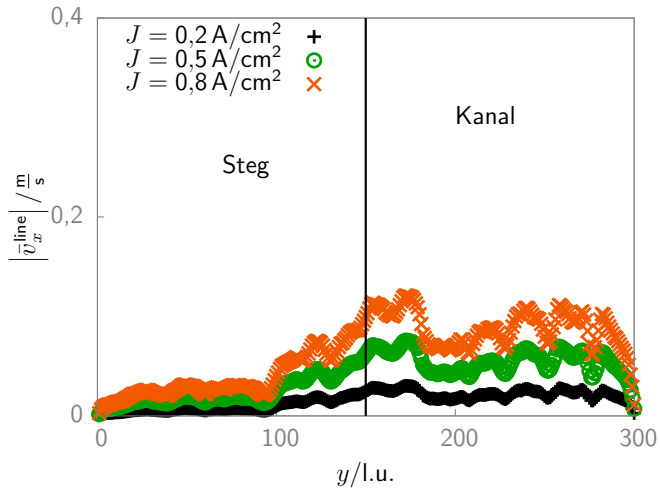
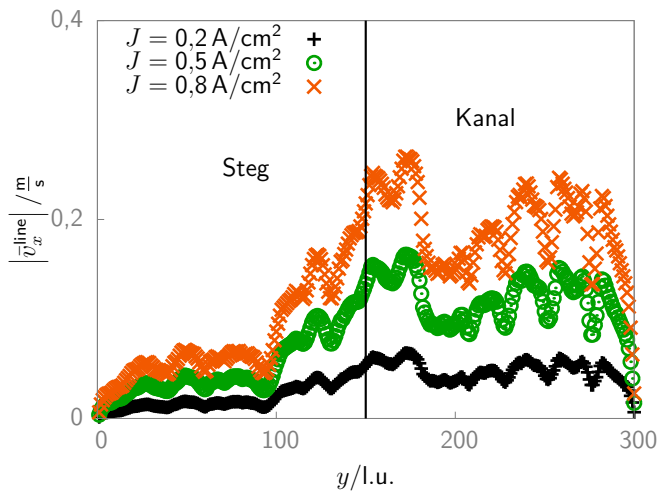


Abbildung 6.4.: Vergleich einer Kanal-Steg-Geometrie  $\alpha$  für die Zweikomponenten-Strömung Sauerstoff/Wasserdampf an der Kathode der HT-PEFC. Aufgetragen ist der Betrag der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}_x^{\text{line}}$  über  $y$  für beide Komponenten bei einer Stromdichte von  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$ .



(a) 1. Komponente: Sauerstoff



(b) 2. Komponente: Wasserdampf

Abbildung 6.5.: Vergleich einer Kanal-Steg-Geometrie  $\alpha$  für die Zweikomponenten-Strömung Sauerstoff/Wasserdampf an der Kathode der HT-PEFC. Aufgetragen ist der Betrag der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}_x^{\text{line}}$  über  $y$  für die drei Stromdichten  $J = 0,2 \text{ A cm}^{-2}$ ,  $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$  und  $J = 0,8 \text{ A cm}^{-2}$  für Sauerstoff in Abbildung 6.5a und für Wasserdampf in Abbildung 6.5b.

## 7. Diskussion

Die einzelnen Fragestellungen dieser Arbeit wurden eingangs mit den Geometrien, denen sie in der Brennstoffzelle entsprechen, verknüpft. In den einzelnen Teilbereichen wurden einerseits in sich abgeschlossene Themen behandelt, andererseits dienten die Erkenntnisse als Grundlagen für die Betrachtung von immer komplexer werdenden Geometrien in den anschließenden Kapiteln. Im Folgenden sollen für beide Aspekte die Ergebnisse in Bezug auf die formulierten Zielsetzungen diskutiert werden. Als einfachstes Modell wurde zunächst die Wasserstoff-Strömung im leeren Kanal untersucht mit Randbedingungen, die sich an der Strömung durch die GDL in der HT-PEFC Wasserstoff orientierten. Der LB-Algorithmus konnte validiert werden, indem das aus der Literatur bekannte Strömungsprofil im leeren Kanal mit den simulierten Strömungen verglichen wurde. Dabei wurden sowohl die hydraulische Einlaufänge als auch das Druck-Profil entlang des Kanals mit den aus der Literatur errechneten Daten verglichen und eine Abweichung von 10 % beziehungsweise 4 % beobachtet. Für die in der Simulation nur optisch abzugrenzende Einlaufänge und die numerisch empfindlichen Druckdifferenzen ist damit sehr erfolgreich eine erste Validierung gelungen. Schließlich wurden die Permeabilität und die Tortuosität für dasselbe Szenario untersucht und als Ergebnis Abweichungen im Promillebereich erhalten. Als Ursache für die Diskrepanz der Genauigkeit zwischen dem Druck-Profil und den Kennzahlen konnte der Unterschied der experimentellen Gleichungen ausgemacht werden. Im Fall der Permeabilität sind in der Gleichung keine makroskopischen Eingangsparameter der Strömung enthalten und gleichzeitig ist das Ergebnis genauer. Somit wurden die Eingangsparameter als mögliche Fehlerursache für das Druckprofil identifiziert. Ein Ergebnis, das im Laufe der Arbeit immer wieder beobachtet wurde, war das unterschiedliche Verhalten der Kennzahlen Tortuosität und Permeabilität in Bezug auf die relative Änderung bei der Variation von Eingangsparametern der Strömung: Die Permeabilität unterlag hierbei generell größeren Schwankungen als die Tortuosität. In den weiteren Betrachtungen wurden jeweils die Kennzahlen, insbesondere die Permeabilität, als vergleichender Parameter herangezogen. Weiterhin wurden im leeren Kanal anhand von Minimalbeispielen die Grenzbereiche der LB-Simulation in Bezug auf die Gitterauflösung und die Variation des Kollisionsparameters  $\omega$  untersucht. Bei ausreichender Auflösung entsprach das Hagen-Poiseuille-Profil im Kanal mit rechteckigem Querschnitt sehr genau der analytischen Lösung. Dabei wurden für diese beiden Parameter die LB-Algorithmen SRT und MRT miteinander verglichen. Der MRT-Algorithmus stellt eine Verallgemeinerung des SRT-Algorithmus dar, der laut Literatur verlässlicher ist in Bezug auf die Variation von Eingangsparametern. Die erhaltenen Ergebnisse bestätigten dies: Für den MRT-Algorithmus lieferte ein wesentlich breiterer Parameterbereich von Kollisionsparameter und Gitterauflösung sinnvolle Lösungen als für den SRT-Algorithmus. Dabei war es wichtig zwischen physikalischen Effekten und numerischen Einflüssen zu differenzieren. Im Gegensatz zum eben diskutierten Ergebnis für die hydraulische Einlaufänge beispielsweise ist die Gitterauflösung ein rein numerischer Einfluss. Die Ergebnisse für derartige Analysen wurden daher meist in Gittereinheiten angegeben. Für den SRT-Algorithmus wurde empfohlen, den leeren Kanal mit mindestens 5 l.u. bis 10 l.u. aufzulösen. Die Wahl des Kollisionsparameters sollte im Bereich  $\omega = 1,0$  l.u. bis  $1,4$  l.u. liegen. Für den MRT-Algorithmus wurde herausgefunden, dass eine Auflösung des Kanals  $< 5$  l.u. zu

Fehlern im einstelligen Prozentbereich führen kann und prinzipiell eine freie Wahl von  $\omega$  möglich ist, ohne dass die Probleme des SRT-Algorithmus auftreten. Die in der Arbeit überwiegend betrachteten Materialien haben eine Auflösung, deren mittlerer Porenradius  $\sim 6$  l.u. entspricht und somit die geforderten Bedingungen an die Algorithmen erfüllen. Für beide Algorithmen stellte sich der Bereich  $\omega = 1,0$  l.u. bis  $1,4$  l.u. in Bezug auf die Konvergenz als sinnvolle Wahl heraus. Mit der Validierung des Algorithmus am leeren Kanal beziehungsweise der Einschätzung der Genauigkeit des Algorithmus und der Festlegung von sinnvollen Parameterbereichen für die Auflösung und die Kollisionsfrequenz konnten erfolgreich wichtige Fragestellungen des LB-Algorithmus diskutiert werden. Diese Diskussion lieferte außerdem die Grundlage, den Algorithmus für die Strömungssimulation in GDL-Strukturen zu nutzen.

Mit dem unter Annahme der Betriebsbedingungen der HT-PEFC validierten LB-Algorithmus wurde anschließend unter denselben Randbedingungen die Strömung durch GDL-Materialien betrachtet. Dabei wurden Realdaten und das Modell eines Vlieses sowie ein Papier-Modell einer GDL untersucht. Die Strömung im modellierten Vlies diente zunächst dazu den Zusammenhang zum leeren Kanal herzustellen. Dieser Zusammenhang war wichtig, da die betrachteten Kanäle mit groben Gitterauflösungen, die zu einem Verhalten des Algorithmus geführt haben, der nicht mit der Referenz-Lösung aus der Literatur übereinstimmt, nicht unbedingt den Poren in einer GDL-Struktur entsprechen. Es konnte erfolgreich eine Analogie zwischen der Strömung im leeren Kanal und der GDL hergestellt werden für die Variation des Kollisionsparameters: Die Kennzahlen der Strömung in grob aufgelösten Kanälen zeigten für diese Variation qualitativ dasselbe von der Referenz-Lösung abweichende Verhalten wie die in der GDL-Struktur. Anhand dessen konnte der Schluss gezogen werden, dass sich die Aussagen über die Parametereinstellung des leeren Kapitels auf die GDL-Strukturen übertragen lassen und diese in grober Näherung eine Ansammlung von Poren mit bestimmtem Durchmesser darstellten. Mit diesem Ergebnis konnte so die wichtige Verbindung hergestellt werden zwischen der Strömung im leeren Kanal und der Strömung in der GDL. Die Abweichungen von der Referenz-Lösung im SRT-Algorithmus wurden außerdem zum Anlass genommen, die weiteren Berechnungen ausschließlich mit dem MRT-Algorithmus durchzuführen, der als wesentlich besserer und genauerer Algorithmus charakterisiert werden konnte. Mit diesem Ergebnis über die LB-Parametereinstellungen wurden anschließend für das Vlies die geometrischen Abmessungen bestimmt, die nötig sind, um mit der Strömungssimulation repräsentative Gebiete abzubilden und nicht lokale Effekte einzelner Poren zu beschreiben. Dazu wurde zunächst die Mindest-Größe des leeren Randbereichs nach der Ein- und Ausströmung (Vor- und Nachlauf) bestimmt, die angenommen werden muss, um zu verhindern, dass sich das am Rand vorgegebene Profil auf die GDL-Struktur überträgt. Es konnte gezeigt werden, dass dieser Bereich für die gewählten Randbedingungen in der Größenordnung liegt wie im Fall leeren Kanals, in dem sich ein Hagen-Poiseuille-Profil entlang der hydraulischen Einlaufänge ausbildet. Aus diesem Grund wurden für die GDL-Strukturen jeweils ähnliche Vor- und Nachlauf-Breiten gewählt wie dort (mindestens  $30$  l.u.). Schließlich wurde für das REV in Fließrichtung eine Mindest-Dicke von  $40$  l.u. ( $35 \mu\text{m}$ ) für das Vlies-Material bestimmt. Ein stichprobenartiger Vergleich für das Papier-Material, welches in dieser Arbeit nur zu Referenz-Zwecken diskutiert wurde, ergab, dass die Annahmen für die Abmessungen hier ebenfalls sinnvoll sind. Um das REV im Querschnitt zu analysieren, wurden Simulationen in verschiedenen stochastisch äquivalenten Geometrien durchgeführt. Das relative Ausmaß dieser Fluktuationen wurde im Folgenden anhand der Standardabweichung für das Vlies und das Papier vergleichend analysiert. Dabei zeigte sich, dass die statistischen Schwankungen für das Papier aufgrund des dort verwendeten Bindermodells mit  $\sim 20\%$  sehr groß sind und damit im Gegensatz zum Vlies mit den Abweichungen von  $\sim 5\%$  auch näherungsweise kein REV darstellen. Für beide Materialien wurde festgestellt, dass eine statistische Betrachtung, insbesondere wenn absolute Werte von Kennzahlen ermittelt werden sollen, für die verwendeten GDL-Materialien unerlässlich ist,

---

um eine entsprechende Genauigkeit zu erzielen. Relative Aussagen können jedoch weiterhin, zum Beispiel für Vergleiche innerhalb einer Geometrie, in bestimmten Anwendungsfällen sinnvoll sein. Mit dieser Erkenntnis, die im Folgenden berücksichtigt wurde, waren alle wesentlichen Untersuchungen der GDL, die eine generelle Materialcharakterisierung voraussetzten, abgeschlossen. So wurde der Algorithmus verwendet, um die Strömungs-Kennzahlen für die verschiedenen in dieser Arbeit verwendeten Materialien zu berechnen und zu vergleichen. Als Referenz diente das Papier, in dem die Strömungssimulationen für die Permeabilität Werte ergaben, die mit den vorhandenen experimentellen Literaturwerten gut übereinstimmen. Dabei wurde berücksichtigt, dass generell die Messung der Permeabilität schwierig ist und daher die Vergleichswerte in der Literatur nicht eindeutig sind. Der relative Vergleich der ermittelten Strömungs-Kennzahlen des Vlies-Materials ergab ebenfalls plausible Resultate. Für die Tortuosität wurden die Ergebnisse mit CFD-Simulationen aus der Literatur verglichen und diskutiert. Zusammenfassend konnte zunächst die Beziehung zum leeren Kanal erfolgreich hergestellt werden, bevor die repräsentative Größe des Simulationsgebiets abgesteckt und dabei der stochastische Einfluss der Struktur quantifiziert wurde. Dies war die Grundlage für die erfolgreichen Material-Charakterisierung von unterschiedlichen GDL-Modellen und den Realdaten.

Mit den bisherigen Untersuchungen wurde gezeigt, dass das erste Ziel der Arbeit, der Material-Charakterisierung von faserbasierten Mikrostrukturen unter vorher sorgfältig analysierten Randbedingungen erreicht ist. Mit diesem Wissen wird das Modell Strömungssimulation im Folgenden eingesetzt, um ein weiteres Modell, das Geometrie-Modell für die Vlies-Geometrie, genauer zu verstehen. Zunächst wurden dazu Minimalbeispiele von Porensystemen untersucht und deren Auswirkungen diskutiert. Dabei wurden sogenannte freie Parameter, der Porenradius, die Porenradienverteilung, die Faserlegung und die Porosität identifiziert, die auch für das GDL-Modell von entscheidender Bedeutung sind. In der Konstruktion des GDL-Modells wird ein stochastischer Parameter variiert, dessen einzelne Werte mit den freien Parametern in Bezug auf die Strömungssimulation in Verbindung stehen. Das Ziel, diese Verbindung zu verstehen, konnte erreicht werden. Zudem war es möglich, eine Realisierung des freien Modells zu ermitteln ( $\beta$  II), die in ihren Strömungseigenschaften in Bezug auf die Kennzahlen Tortuosität und Permeabilität nur mit wenigen Prozent von den Realdaten abwich. Dies bedeutet zudem eine Validierung des GDL-Modells mit Hilfe der Strömungssimulation, da mit dem GDL-Modell die Erzeugung einer sehr realistischen Realisierung möglich ist. Das Verständnis der Verbindung zwischen Strömungssimulation und freien Parametern liefert zudem die Basis für das virtuelle Design einer GDL, die einer von außen vorgegebenen Strömungskennzahl entspricht und eine Vorlage für die reale Konstruktion bieten könnte. Da aus den Realdaten keine beliebig große Anzahl an Geometrien generiert werden kann, wurde bei der Analyse der stochastische Aspekt des Vergleichs bewusst vernachlässigt mit der Absicht das methodische Vorgehen des Materialangleichs in den Vordergrund zu stellen. Die erhaltene Realisierung lieferte die Grundlage für die weiteren Betrachtungen der modellierten Geometrie.

Die wesentliche Motivation für die Verwendung von Modelldaten war die schnelle Berechnung von Geometrien im Gegensatz zu aufwendigen Messungen zur Erzeugung von Realdaten. Dadurch konnten für die Geometrien Stichproben generiert werden, die eine stochastische Analyse bestimmter Fragestellungen erlaubten. Mit dem validierten Geometrie-Modell konnte dies zudem in einer sehr realistischen Struktur geschehen. Die untersuchten Aspekte dabei waren die Auflösung des Simulationsgebietes und der Vergleich der beiden Algorithmen MRT und SRT. Zunächst wurde gezeigt, dass für makroskopisch gleiche Querschnitte, ab einer Auflösung von etwa 150 l.u. entlang des Querschnitts, die Realdaten qualitativ gut mit dem Mittelwert der Stichprobe des Modells übereinstimmen. Ferner wurden für verschiedene Auflösungen des Modells anhand statistischer Tests eine systematische Abweichung zwischen den Mittelwerten unterschiedlicher Auflösungen im Modell festgestellt. Das bedeutet, dass

die Skalierung selbst zwischen den beiden feinsten verwendeten Auflösungen von 450 l.u. und 600 l.u. nicht fein genug war. Dennoch wurden in der Folge Auflösungen von bis zu 300 l.u. verwendet und ein systematischer Fehler von  $\sim 10\%$  in Kauf genommen, um in angemessener Rechenzeit weitere Aspekte zu untersuchen. Zunächst wurde der MRT/SRT-Vergleich durchgeführt. Auch hier wurden mit statistischen Tests die bereits qualitativ diskutierten Aspekte dieses Vergleichs untersucht. Die Abweichung der Permeabilität vom Kollisionsparameter konnte so für den SRT-Algorithmus auch stochastisch bestätigt werden und systematische Fehler zwischen ausgewählten Werten von  $\omega$  wurden identifiziert. Im Vergleich einzelner Permeabilitäten für verschiedene  $\omega$  im MRT-Algorithmus konnte ein, wenn auch wesentlich kleinerer, systematischer Fehler beobachtet werden. Dieses Ergebnis zeigt also, dass die vorher formulierte qualitative Einschätzung, dass der MRT-Algorithmus vom Kollisionsparameter unabhängig ist, nicht richtig war. Mit stochastischen Methoden gelang es so, ein qualitatives Zwischenergebnis zu revidieren. Dies rechtfertigte die Anwendung dieser Methoden somit im Nachhinein. Die generelle positive Einschätzung des MRT-Algorithmus änderte sich durch dadurch hingegen nicht, denn für die praktische Anwendung sind die systematischen Fehler so gering, dass sie in der Diskussion nicht berücksichtigt werden müssen.

Mit dem Kanal-Steg-Szenario wurde anschließend der Fokus auf den Teilbereich der Brennstoffzelle gelegt. Abermals wurde somit die Strömungssimulation angewendet, um Aspekte eines anderen Modells zu untersuchen. Basierend auf einer Synchrotron-Messung in einer realen Geometrie, wurde anhand der Strömungssimulation ein realistisches Kompressionsszenario analysiert. Da die wesentlichen Aufgaben der GDL in der Brennstoffzelle der Quertransport des Gases unter dem Steg ist, war die Geschwindigkeitsverteilung in der obersten Schicht der GDL an der Elektrodenoberfläche das wesentliche Objekt, das betrachtet wurde. In einer qualitativen Analyse wurde dabei zunächst der Einfluss der Kompression auf die Geschwindigkeitsverteilung festgestellt. Es wurde der generelle Trend beschrieben, dass mit der Kompression die Homogenität der Geschwindigkeitsverteilung in nicht linearer Weise abnimmt. Da nur vier Kompressionsstufen des Modells zur Verfügung standen, konnte nur eine Einschätzung abgegeben werden, bis zu welchem Kompressionsgrad eine GDL in der HT-PEFC Sinn macht. Dazu wurde das theoretische Konstrukt einer Brennstoffzelle mit Leerraum anstelle der GDL angenommen, simuliert und mit den Ergebnissen der komprimierten GDL verglichen. Dies führte zur Einschätzung, dass die höchste Komprimierungsstufe (29 %) in etwa die obere Grenze einer sinnvollen Komprimierung darstellt. Mit der LB-Simulation ist es demnach gelungen, das Verständnis der Gasströmung in der GDL der HT-PEFC zu verbessern und eine Einschätzung für die optimale mechanische Verbauung abzugeben.

Im letzten Kapitel wurde mit dem Mehrkomponentensystem Sauerstoff/Wasser an der Kathode der HT-PEFC ein weiterer Aspekt der Brennstoffzelle untersucht. Dazu wurden zunächst grundlegende Aspekte der Diffusion und Konvektion in Bezug auf den LB-Algorithmus diskutiert. Es wurde beschrieben, wie der Massenstrom des Algorithmus aufgrund der verwendeten Randbedingungen so eingestellt wurde, dass die entstandene Diffusion durch einen leeren Kanal dem Fick'schen Gesetz entspricht. Als Nachteil der Methode wurde dabei herausgestellt, dass eine absolute Berechnung des Diffusionskoeffizienten ohne diese Parameter-Anpassung mit den gewählten Randbedingungen nicht möglich ist. Relativ zum leeren Kanal konnte für einen normierten Massenstrom anschließend der effektive Diffusionskoeffizient für das modellierte GDL-Material ermittelt werden. Dieser simulierte effektive Diffusionskoeffizient wurde mit dem aus den Eingangsgrößen berechneten Diffusionskoeffizienten für zwei verschiedene Vorlaufängen verglichen. Als Ergebnis wurden Abweichungen von 30 % für eine Vorlaufänge von 30 l.u. und 3 % für eine Vorlaufänge von 50 l.u. erhalten. Mit einer Vorlaufänge, die in etwa der hydraulischen Einlaufänge im leeren Kanal entspricht, konnte so die Mehrkomponenten-Diffusion in der betrachteten GDL erfolgreich validiert werden. Anschließend wurden die Randbedingungen

---

leicht modifiziert, um den konvektiven Stofftransport, der zwischen Elektrode und Kanal in der Kathode der realen Brennstoffzelle herrscht, zu berücksichtigen. Mit diesen Eingangsparametern wurde die Homogenität der Gasströmung an der obersten Schicht der GDL auf der Elektrodenseite für verschiedene Betriebspunkte der HT-PEFC diskutiert. In dieser Simulation wurden alle bisherigen Erkenntnisse der Arbeit in einer Simulation vereint und damit die übergeordnete Zielsetzung erfüllt: Es wurde eine bereits sehr realistische Simulation für einen makroskopisch relevanten, dreidimensionalen Bereich auf der Kathodenseite der HT-PEFC in einer LB-Mehrkomponenten-Simulation durchgeführt. Zudem wurde mit der Diffusion ein weiterer physikalisch wichtiger Aspekt der Strömung hervorgehoben. In einer qualitativen Diskussion wurde festgestellt, dass die erhaltenen Ergebnisse den Erwartungen, die aus den vorherigen Analysen gewonnen wurden, entsprechen.





## 8. Zusammenfassung

Das Verhalten der Strömung und ihre zugrunde liegenden Einflüsse in der GDL einer realen HT-PEFC setzt sich aus vielen Vorgängen zusammen. Um die Komplexität des Systems zu erfassen, liegt wie oft in der Physik ein vielversprechender Ansatz darin, einfache Modelle zu finden, die wesentlichen physikalischen Fragestellungen auf den Grund gehen. In der vorliegenden Arbeit wurde dies getan und ein Modellansatz für das beschriebene Szenario gewählt, der sich aus drei Teilmodellen zusammensetzt.

Die HT-PEFC ist das erste dieser Modelle. Auf ihr beruhen die Randbedingung für die Geometrie und die makroskopischen Eingangsgrößen des ganzen Systems. Die GDL-Struktur als zweites Modell ist eine poröse Mikrostruktur aus einem stochastischen System von Fasern, dessen Konstruktion sehr komplex ist. Die Strömungssimulation durch die GDL-Struktur in der HT-PEFC ist das dritte dieser Modelle. Mit der Lattice-Boltzmann-Methode wurde ein Algorithmus gewählt, der sich eignet, um die statistische Mikrostruktur aufzulösen. Im Laufe der Arbeit wurden für alle Modelle Teilfragen verfolgt und beantwortet, deren Kontext es war, am Ende der Arbeit alle Modelle so zu kombinieren, dass das Ergebnis möglichst nah an der Realität ist. Für die einzelnen Modelle sollen im Folgenden die wesentlichen Erkenntnisse zusammengefasst werden.

**LB-Simulation:** Der leere Kanal mit rechteckigem Querschnitt stellt eine sinnvolle Grundlage dar, um den LB-Algorithmus zu validieren und seine Parameterbereiche einzugrenzen. Anhand einer Druckdifferenz entlang des Kanals kann mit Bounce-Back-Randbedingungen die hydraulische Einlaulänge mit 10 %-iger Genauigkeit bestimmt werden. Für den generellen Druckabfall ist sogar eine Genauigkeit von 4 % möglich. Die Genauigkeit der Kennzahlen Permeabilität und Tortuosität, die sich daraus errechnen, lassen sich bis in den Promille-Bereich bestimmen, da in ihrer Berechnung weniger fehlerhafte Größen Einfluss haben. Das Geschwindigkeitsprofil entspricht qualitativ dem erwarteten Hagen-Poiseuille-Profil. Aus dem quantitativen Vergleich mit bekannten Lösungen im leeren Kanal lassen sich für die Gitterauflösung und den Kollisionsparameter  $\omega$  Parameterbereiche ermitteln, in denen der LB-Algorithmus im Allgemeinen sinnvoll angewendet werden kann. Dabei zeigt die intensive Gegenüberstellung der beiden Algorithmen SRT und MRT die bekannte Überlegenheit des MRT-Algorithmus und verdeutlicht auch quantitativ die großen Unterschiede. Es werden folgende Parameterbereiche vorgeschlagen - für SRT: eine Auflösung von mindestens 5 l.u. bis 10 l.u. und  $1,0 \leq \omega \leq 1,6$  l.u. - für MRT: eine Auflösung  $> 5$  l.u. und  $0 < \omega < 2$  l.u..

**GDL:** Der validierte Code zeigt im SRT-Algorithmus auch für die GDL-Struktur eine Abhängigkeit von  $\omega$ . Das Verhalten ähnelt stark dem Verhalten des leeren Kanals mit der größten Auflösung. So konnte in Analogie der Zusammenhang hergestellt werden, dass die Parameterabschätzung auch in dieser Struktur gilt und die engsten Porenstrukturen sich in Bezug auf die Strömung so verhalten wie der leere Kanal. Der betrachtete Ausschnitt entspricht für das Vlies näherungsweise einem REV, der Querschnitt ist für das Papier-Modell mit Bindermaterial hingegen nicht repräsentativ. Für beide Materialien sind stochastische Betrachtungen zur Steigerung der Genauigkeit sinnvoll. Mit dem Modell-Ansatz für die GDL kann dies in angemessener

Rechenzeit geschehen. Die simulierten Struktur-Kennzahlen Permeabilität und Tortuosität liegen im Bereich der gemessenen Kennzahlen in der Literatur. Auch relative Betrachtungen sowie Vergleiche mit anderen Simulationen ergeben plausible Ergebnisse. Stochastische Analysen in generierten Stichproben des Geometrie-Modells zeigen systematische Fehler im Bereich der Auflösung und in der Wahl des Algorithmus. Es zeigt sich, dass die Auflösung von 450 l.u. einen Fehler von  $\sim 4\%$  zur maximalen Auflösung hat, bei der Auflösung 300 l.u. sind es  $\sim 11\%$ . Im stochastischen Vergleich der Algorithmen verhält sich der SRT-Algorithmus gemäß dem erwarteten Einfluss. Der MRT-Algorithmus ist trotz qualitativer Genauigkeit fehlerbehaftet, allerdings mit einer geringen Abweichung von  $\sim 0,2\%$ . Neben der reinen Material-Charakterisierung kann die LB-Simulation erfolgreich dazu verwendet werden, ein Verständnis über den Einfluss von Strukturparametern, die sich aus dem stochastischen Modell ergeben, zu entwickeln. An Minimalbeispielen lassen sich die Strukturparameter Porenradius, Porenradienverteilung, Faserlegung und (lokale) Porosität identifizieren und untersuchen. Mit Hilfe der Strömungssimulation ist es möglich, die Parameter so anzupassen, dass sowohl eine Validierung des GDL-Modells erfolgt als auch die Grundlage geschaffen wird für die virtuelle Konstruktion von Geometrien nach entsprechenden Vorgaben an die Strömungskennzahlen.

**HT-PEFC:** Im Einkomponenten-Modell ist das Kanal-Steg-Szenario eine sehr reale Beschreibung der Anodenseite basierend auf den Synchrotron-Daten eines Kompressions-Stempels. Die Homogenität der Gasströmung an der Elektrode hängt vom Kompressionsgrad ab. Das wesentliche Ergebnis ist, dass nur eine Kompression von unter 30 % in Bezug auf die Gasströmung eine Verbesserung der Homogenität bringt in Bezug auf einen hypothetischen leeren Kanal. Im Mehrkomponenten-Modell lässt sich ein effektiver Diffusionskoeffizient für das Vlies bei einem Vorlauf von 50 l.u. auf 3 % genau bestimmen. Im realistischen Kanal-Steg-Szenario können die drei Modelle LB-Simulation, GDL und HT-PEFC erfolgreich in einer Simulation kombiniert werden. Die Teilmodelle waren im Kontext der Arbeit wichtig um dieses Ziel zu erreichen. Kapitelübergreifend sind die wesentlichen Resultate:

- Der MRT-Algorithmus ist in seiner numerischen Stabilität im vorliegenden System zu verwenden und liefert verlässliche Ergebnisse.
- Mit der LB-Simulation können Permeabilitäten und dazugehörige Tortuositäten mit hinreichender Genauigkeit bestimmen werden.
- Die Gasverteilung unter den Stegen der Elektrode kann durch eine gemäßigte Kompression der GDL von bis circa 30 % verbessert werden.

# Literaturverzeichnis

- [1] Lin, P. ; Liu, P. L.-F.: Internal wave-maker for Navier-Stokes equations models. In: *Journal of Waterway, Port, Coastal, and Ocean Engineering* 125 (1999), Nr. 4, 207–215
- [2] Ott, C.: *Strömungssimulation in der Umwelttechnologie*. [www.hessen-umwelttech.de/mm/cfd\\_09\\_screen.pdf](http://www.hessen-umwelttech.de/mm/cfd_09_screen.pdf). Version: 11.11.2013
- [3] Bossel, U.: *The birth of the fuel cell*. Oberrohrdorf : Europ. Fuel Cell Forum, 2000
- [4] Gasik, M. (Hrsg.): *Materials for fuel cells*. Boca Raton, Fla. : CRC Press, 2008 (Woodhead publishing in materials)
- [5] Tötze, C. ; Manke, I. ; Arlt, T. ; Markötter, H. ; Hilger, A. ; Wieder, F. ; Böhner, J. ; Lehnert, W. ; Gaiselmann, G. ; Schmidt, V. ; Haußmann, J. ; Scholta, J. ; Riesemeier, H. ; Kupsch, A. ; Banhart, J.: Three-dimensional studies on compressed gas diffusion layers using synchrotron x-ray imaging. In: *Journal of Power Sources* 253 (2014), 123–131
- [6] Thiedmann, R. ; Manke, I. ; Lehnert, W. ; Schmidt, V.: Random geometric graphs for modelling the pore space of fibre-based materials. In: *Journal of Materials Science* 46 (2011), Nr. 24, 7745–7759
- [7] Data Sheet: *Freudenberg gas diffusion layers for PMFC and DMFC*. 2013
- [8] Thiedmann, R. ; Hartnig, C. ; Manke, I. ; Schmidt, V. ; Lehnert, W.: Local structural characteristics of pore space in GDLs of PEM fuel cells based on geometric 3D graphs. In: *Journal of The Electrochemical Society* 156 (2009), Nr. 11, B1339–B1347
- [9] Arnošt, D. ; Schneider, P.: Dynamic transport of multicomponent mixtures of gases in porous solids. In: *The Chemical Engineering Journal and the Biochemical Engineering Journal* 57 (1995), Nr. 2, 91–99
- [10] Lehnert, W. ; Meusinger, J. ; Thom, F.: Modelling of gas transport phenomena in SOFC anodes. In: *Journal of Power Sources* 87 (2000), Nr. 1–2, 57–63
- [11] Gaiselmann, G. ; Thiedmann, R. ; Manke, I. ; Lehnert, W. ; Schmidt, V.: Stochastic 3D modeling of fiber-based materials. In: *Computational Materials Science* 59 (2012), 75–86
- [12] Thiedmann, R. J. ; Hartnig, C. ; Manke, I. ; Lehnert, W. ; Schmidt, V.: Quantitative comparison of microstructures in different GDLs based on geometric 3D graphs. In: *ECS Meeting Abstracts* MA2009-01 (2009), Nr. 5, 273
- [13] Thiedmann, R. ; Fleischer, F. ; Hartnig, C. ; Lehnert, W. ; Schmidt, V.: Stochastic 3D modeling of the GDL structure in PEMFCs based on thin section detection. In: *Journal of The Electrochemical Society* 155 (2008), B391–B399

- [14] Brinkmann, J. P. ; Froning, D. ; Reimer, U. ; Schmidt, V. ; Lehnert, W. ; Stolten, D.: 3D modeling of one and two component gas flow in fibrous microstructures in fuel cells by using the lattice-Boltzmann method. In: *ECS Transactions* 50 (2013), Nr. 2, 207–219
- [15] Rama, P. ; Liu, Y. ; Chen, R. ; Ostadi, H. ; Jiang, K. ; Zhang, X. ; Fisher, R. ; Jeschke, M.: An x-ray tomography based lattice Boltzmann simulation study on gas diffusion layers of polymer electrolyte fuel cells. In: *Journal of Fuel Cell Science and Technology* 7 (2010), Nr. 3, 031015
- [16] Van Doormaal, M. A. ; Pharoah, J. G.: Determination of permeability in fibrous porous media using the Lattice Boltzmann method with application to PEM fuel cells. In: *International Journal for Numerical Methods in Fluids* 59 (2009), Nr. 1, 75–89
- [17] Froning, D. ; Gaiselmann, G. ; Reimer, U. ; Brinkmann, J. ; Schmidt, V. ; Lehnert, W.: Stochastic aspects of mass transport in gas diffusion layers. In: *Transport in Porous Media* 103 (2014), 469–495
- [18] Gaiselmann, G. ; Froning, D. ; Tötze, C. ; Quick, C. ; Manke, I. ; Lehnert, W. ; Schmidt, V.: Stochastic 3D modeling of non-woven materials with wet-proofing agent. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 38 (2013), Nr. 20, 8448–8460
- [19] Barbir, F.: *PEM fuel cells*. 2. ed. Amsterdam : Elsevier/Acad. Press, 2013
- [20] Franco, A. A.: *Polymer electrolyte fuel cells*. Singapore : Pan Stanford Publications, 2013
- [21] Supra, J.: *Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt- Brennstoffzellen-Stacks*. Jülich, RWTH Aachen, Diss., 2014
- [22] Wang, Yun ; Chen, K. S. (Hrsg.): *PEM Fuel Cells*. New York : Momentum Press, 2013
- [23] Bendzulla, A.: *Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse*. Jülich, RWTH Aachen, Diss., 2010
- [24] Maier, W. ; Arlt, T. ; Wippermann, K. ; Wannek, C. ; Manke, I. ; Lehnert, W. ; Stolten, D.: Correlation of synchrotron x-ray radiography and electrochemical impedance spectroscopy for the investigation of HT-PEFCs. In: *Journal of The Electrochemical Society* 159 (2012), Nr. 8, F398–F404
- [25] Lücke, L.: *Analyse des Betriebsverhaltens von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen*. Jülich, RWTH Aachen, Diss., 2013
- [26] Samsun, R. C. ; Wiethege, C. ; Pasel, J. ; Janßen, H. ; Lehnert, W. ; Peters, R.: HT-PEFC systems operating with diesel and kerosene for APU application. In: *Energy Procedia* 29 (2012), 541–551
- [27] Litster, S. ; Buie, C. R. ; Fabian, T. ; Eaton, J. K. ; Santiago, J. G.: Active water management for PEM fuel cells. In: *Journal of The Electrochemical Society* 154 (2007), Nr. 10, B1049–B1058
- [28] Cindrella, L. ; Kannan, A. M. ; Lin, J. F. ; Saminathan, K. ; Ho, Y. ; Lin, C. W. ; Wertz, J. A.: Gas diffusion layer for proton exchange membrane fuel cells – a review. In: *Journal of Power Sources* 194 (2009), Nr. 1, 146–160

- [29] Wainright, J. S. ; Wang, J.-T. ; Weng, D. ; Savinell, R. F. ; Litt, M.: Acid-doped polybenzimidazoles: A new polymer electrolyte. In: *Journal of The Electrochemical Society* 142 (1995), Nr. 7, L121–L123
- [30] O'Hayre, R.: *Fuel cell fundamentals*. Hoboken, NJ : Wiley, 2009
- [31] Reimer, U.: High-temperature polymer electrolyte fuel cell modeling. In: Stolten, D. (Hrsg.) ; Emonts, B. (Hrsg.): *Fuel cell science and engineering: Materials, processes, systems and technology, Band 1*. Weinheim : Wiley-VCH, 2012, 819
- [32] Kapitel D Stoffwerte und Zustandsgrößen. In: M. Kleiber, R. J. (Hrsg.): *VDI-Wärmeatlas*. Zehnte, bearbeitete und erweiterte Auflage. Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2006 (VDI Buch)
- [33] GESTIS-Stoffdatenbank: *Eintrag Wasserstoff*. [http://gestis.itrust.de/nxt/gateway.dll/gestis\\_de/000000.xml?f=templates\\$fn=default.htm\\$3.0](http://gestis.itrust.de/nxt/gateway.dll/gestis_de/000000.xml?f=templates$fn=default.htm$3.0). Version: 11.11.2013
- [34] Einstein, A.: Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. In: *Annalen der Physik* 322 (1905), Nr. 8, 549–560
- [35] Malek, K. ; Coppens, M.-O.: Knudsen self- and Fickian diffusion in rough nanoporous media. In: *The Journal of Chemical Physics* 119 (2003), Nr. 5, 2801–2811
- [36] Oertel, H. ; Böhle, M. ; Dohrmann, U.: *Übungsbuch Strömungsmechanik*. 5., überarb. und erw. Aufl. Wiesbaden : Vieweg, 2006 (uni-script)
- [37] Hänel, D.: *Molekulare Gasdynamik*. Berlin : Springer, 2004
- [38] Spurk, J.: *Strömungslehre*. 4. Aufl. Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1996 (Springer-Lehrbuch)
- [39] Heller, V.: Scale effects in physical hydraulic engineering models. In: *Journal of Hydraulic Research* 49 (2011), Nr. 3, 293–306
- [40] Kvesić, M. ; Reimer, U. ; Froning, D. ; Lüke, L. ; Lehnert, W. ; Stolten, D.: 3D modeling of a HT-PEFC stack using reformat gas. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 37 (2012), 12438–12450
- [41] Lüke, L. ; Janßen, H. ; Kvesić, M. ; Lehnert, W. ; Stolten, D.: Performance analysis of HT-PEFC stacks. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 37 (2012), Nr. 11, 9171–9181
- [42] Sivertsen, B. R. ; Djilali, N.: CFD-based modelling of proton exchange membrane fuel cells. In: *Journal of Power Sources* 141 (2005), Nr. 1, 65–78
- [43] Kvesić, M.: *Modellierung und Simulation von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen*. Jülich, RWTH Aachen, Diss., 2013
- [44] Kvesić, M. ; Reimer, U. ; Froning, D. ; Lüke, L. ; Lehnert, W. ; Stolten, D.: 3D modeling of a 200 cm<sup>2</sup> HT-PEFC short stack. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 37 (2012), Nr. 3, 2430–2439

- [45] Iii, W. G. ; Merinov, B. ; Duin, A. van ; Jacob, T. ; Blanco, M. ; Molinero, V. ; Jang, S. S. ; Jang, Y. H.: Multi-paradigm multi-scale simulations for fuel cell catalysts and membranes. (2005)
- [46] Kulikovsky, A. A.: *Analytical modelling of fuel cells*. 1. ed. Amsterdam : Elsevier, 2010
- [47] Frisch, U. ; Hasslacher, B. ; Pomeau, Y.: Lattice-gas automata for the Navier-Stokes equation. In: *Phys. Rev. Lett.* 56 (1986), Apr., 1505–1508
- [48] McNamara, G. R. ; Zanetti, G.: Use of the Boltzmann equation to simulate lattice-gas automata. In: *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988), Nov., 2332–2335
- [49] Higuera, F. J. ; Jiménez, J.: Boltzmann approach to lattice gas simulations. In: *EPL (Europhysics Letters)* 9 (1989), Nr. 7, 663
- [50] Wolf-Gladrow, D. A.: *Lattice-gas cellular automata and lattice Boltzmann models - an introduction*. Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2005
- [51] D'Humières, D. ; Ginzburg, I. ; Krafczyk, M. ; Lallemand, P. ; Luo, L.-S.: Multiple-relaxation-time lattice Boltzmann models in three dimensions. In: *Philosophical Transactions of the Royal Society - Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 360 (2002), Nr. 1792, 437–451
- [52] Schwabl, F.: *Statistische Mechanik*. 3., aktualisierte Aufl. Berlin : Springer, 2006 (Springer-Lehrbuch)
- [53] Cercignani, C.: Gas-surface interaction and the H-theorem. In: *The Boltzmann equation and its applications* Bd. 67. Springer New York, 1988, 104–157
- [54] Succi, S.: *The lattice Boltzmann equation*. Oxford : Clarendon Press, 2001 (Oxford science publications)
- [55] Cercignani, C. ; Illner, R. ; Pulvirenti, M.: *The mathematical theory of dilute gases*. New York : Springer, 1994 (Applied mathematical sciences 106)
- [56] Cercignani, C.: *Ludwig Boltzmann*. Repr. Oxford : Oxford Univ. Press, 2008
- [57] Pareschi, L. ; Russo, G.: An introduction to Monte Carlo method for the Boltzmann equation. In: *ESAIM: Proc.* 10 (2001), Mai, Nr. 3, 35–75
- [58] Bhatnagar, P. L. ; Gross, E. P. ; Krook, M.: A model for collision processes in gases. I. Small amplitude processes in charged and neutral one-component systems. In: *Phys. Rev.* 94 (1954), Mai, Nr. 3, 511–525
- [59] He, X. ; Luo, L.-S.: Theory of the lattice Boltzmann method: From the Boltzmann equation to the lattice Boltzmann equation. In: *Phys. Rev. E* 56 (1997), Dez., 6811–6817
- [60] Chen, S. ; Chen, H. ; Martnez, D. ; Matthaeus, W.: Lattice Boltzmann model for simulation of magnetohydrodynamics. In: *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991), Dez., 3776–3779
- [61] Anwar, S. ; Sukop, M. C.: Regional scale transient groundwater flow modeling using lattice Boltzmann methods. In: *Computers & Mathematics with Applications* 58 (2009), Nr. 5, 1015–1023

- [62] Bernsdorf, J. ; Wang, D.: Blood flow simulation in cerebral aneurysm: A lattice Boltzmann application in medical physics. In: *Parallel Computational Fluid Dynamics 2007* Bd. 67. Springer Berlin Heidelberg, 2009, 291–296
- [63] Lee, T. ; Lin, C.-L.: A stable discretization of the lattice Boltzmann equation for simulation of incompressible two-phase flows at high density ratio. In: *Journal of Computational Physics* 206 (2005), Nr. 1, 16–47
- [64] Qian, Y. H. ; D’Humières, D. ; Lallemand, P.: Lattice BGK models for Navier-Stokes equation. In: *EPL (Europhysics Letters)* 17 (1992), Nr. 6, 479
- [65] Lallemand, P. ; Luo, L.-S.: Theory of the lattice Boltzmann method: Acoustic and thermal properties in two and three dimensions. In: *Phys. Rev. E* 68 (2003), Sept., 036706
- [66] Chapman, S.: On the law of distribution of molecular velocities, and on the theory of viscosity and thermal conduction, in a non-uniform simple monatomic gas. In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character* 216 (1916), Nr. 538–548, 279–348
- [67] Enskog, D.: *Kinetische Theorie der Vorgänge in mässig verdünnten Gasen.*, Uppsala: Almqvist & Wiksells boktryckeri-a.-b., Diss., 1917
- [68] Chapman, S. ; Cowling, T. G.: *The mathematical theory of non-uniform gases.* 3. ed. Cambridge : Univ. Pr., 1970
- [69] Qian, Y.-H. ; Zhou, Y.: Complete Galilean-invariant lattice BGK models for the Navier-Stokes equation. In: *EPL (Europhysics Letters)* 42 (1998), Nr. 4, 359
- [70] Nie, X. B. ; Shan, X. ; Chen, H.: Galilean invariance of lattice Boltzmann models. In: *EPL (Europhysics Letters)* 81 (2008), Nr. 3, 34005
- [71] Pan, C. ; Luo, L.-S. ; Miller, C. T.: An evaluation of lattice Boltzmann schemes for porous medium flow simulation. In: *Computers & Fluids* 35 (2006), Nr. 8–9, 898–909
- [72] Filippova, O. ; Succi, S. ; Mazzocco, F. ; Arrighetti, C. ; Bella, G. ; Hänel, D.: Multiscale lattice Boltzmann schemes with turbulence modeling. In: *Journal of Computational Physics* 170 (2001), Nr. 2, 812–829
- [73] Gallivan, M. A. ; Noble, D. R. ; Georgiadis, J. G. ; Buckius, R. O.: An evaluation of the bounce-back boundary condition for lattice Boltzmann simulations. In: *International Journal for Numerical Methods in Fluids* 25 (1997), Nr. 3, 249–263
- [74] He, X. ; Zou, Q. ; Luo, L.-S. ; Dembo, M.: Analytic solutions of simple flows and analysis of nonslip boundary conditions for the lattice Boltzmann BGK model. In: *Journal of Statistical Physics* 87 (1997), 115–136
- [75] Ginzburg, I. ; d’Humières, D.: Multireflection boundary conditions for lattice Boltzmann models. In: *Phys. Rev. E* 68 (2003), Dez., Nr. 6, 066614
- [76] Chun, B. ; Ladd, A. J. C.: Interpolated boundary condition for lattice Boltzmann simulations of flows in narrow gaps. In: *Physical Review E - Statistical, Nonlinear and Soft Matter Physics* 75 (2007), Nr. 6 Pt 2, 066705



- [77] Kao, P.-H. ; Yang, R.-J.: An investigation into curved and moving boundary treatments in the lattice Boltzmann method. In: *Journal of Computational Physics* 227 (2008), Nr. 11, 5671–5690
- [78] Guo, Z. ; Zheng, C. ; Shi, B.: An extrapolation method for boundary conditions in lattice Boltzmann method. In: *Physics of Fluids* 14 (2002), Nr. 6, 2007–2010
- [79] Inamuro, T. ; Yoshino, M. ; Ogino, F.: A non-slip boundary condition for lattice Boltzmann simulations. In: *Physics of Fluids* 7 (1995), Nr. 12, 2928–2930
- [80] Chen, S. ; Martínez, D. ; Mei, R.: On boundary conditions in lattice Boltzmann methods. In: *Physics of Fluids* 8 (1996), Nr. 9, 2527–2536
- [81] Zou, Q. ; He, X.: On pressure and velocity boundary conditions for the lattice Boltzmann BGK model. In: *Physics of Fluids* 9 (1997), Nr. 6, 1591–1598
- [82] He, X. ; Zou, Q.: Analysis and boundary condition of the lattice Boltzmann BGK model with two velocity components. In: *Biophysics* (1995), 12
- [83] Hecht, M. ; Harting, J.: Implementation of on-site velocity boundary conditions for D3Q19 lattice Boltzmann simulations. In: *Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment* 2010 (2010), Nr. 01, P01018
- [84] d'Humières, D.: Generalized lattice-Boltzmann equations. In: Shizgal, B. D. (Hrsg.): *Rarefied gas dynamics: theory and simulations*. Washington, DC : American Inst. of Aeronautics and Astronautics, 1994 (Progress in astronautics and aeronautics 159)
- [85] Lallemand, P. ; Luo, L.-S.: Theory of the lattice Boltzmann method: Dispersion, dissipation, isotropy, Galilean invariance, and stability. In: *Phys. Rev. E* 61 (2000), Juni, Nr. 6, 6546–6562
- [86] Ladd, A. J. C.: Numerical simulations of particulate suspensions via a discretized Boltzmann equation. Part 1. Theoretical foundation. In: *Journal of Fluid Mechanics* 271 (1994), 285–309
- [87] Ginzbourg, I. ; Adler, P.: Boundary flow condition analysis for the three-dimensional lattice Boltzmann model. In: *Journal de Physique II* 4 (1994), Nr. 2, 191–214
- [88] Ginzburg, I.: Variably saturated flow described with the anisotropic lattice Boltzmann methods. In: *Computers & Fluids* 35 (2006), Nr. 8–9, 831–848
- [89] Lallemand, P. ; Luo, L.-S.: Lattice Boltzmann method for moving boundaries. In: *J. Comput. Phys.* 184 (2003), Jan., 406–421
- [90] Gao, Y. ; Zhang, X. ; Rama, P. ; Chen, R. ; Ostadi, H. ; Jiang, K.: Lattice Boltzmann simulation of water and gas flow in porous gas diffusion layers in fuel cells reconstructed from micro-tomography. In: *Computers & Mathematics with Applications* 65 (2013), Nr. 6, 891–900
- [91] Gunstensen, A. K. ; Rothman, D. H. ; Zaleski, S. ; Zanetti, G.: Lattice Boltzmann model of immiscible fluids. In: *Phys. Rev. A* 43 (1991), Apr., Nr. 8, 4320–4327
- [92] Gunstensen, A. K.: *Lattice-Boltzmann studies of multiphase flow through porous media.*, MIT, Diss., 1992

- [93] Rothman, D. H. ; Keller, J. M.: Immiscible cellular-automaton fluids. In: *Journal of Statistical Physics* 52 (1988), 1119–1127
- [94] Grunau, D. ; Chen, S. ; Eggert, K.: A lattice Boltzmann model for multiphase fluid flows. In: *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics (1989-1993)* 5 (1993), Nr. 10, 2557–2562
- [95] Shan, X. ; Chen, H.: Lattice Boltzmann model for simulating flows with multiple phases and components. In: *Phys. Rev. E* 47 (1993), März, Nr. 3, 1815–1819
- [96] Shan, X. ; Chen, H.: Simulation of nonideal gases and liquid-gas phase transitions by the lattice Boltzmann equation. In: *Phys. Rev. E* 49 (1994), Apr., Nr. 4, 2941–2948
- [97] Martys, N. S. ; Chen, H.: Simulation of multicomponent fluids in complex three-dimensional geometries by the lattice Boltzmann method. In: *Phys. Rev. E* 53 (1996), Jan., Nr. 1, 743–750
- [98] Orlandini, E. ; Swift, M. R. ; Yeomans, J. M.: A lattice Boltzmann model of binary-fluid mixtures. In: *EPL (Europhysics Letters)* 32 (1995), Nr. 6, 463–468
- [99] Swift, M. R. ; Orlandini, E. ; Osborn, W. R. ; Yeomans, J. M.: Lattice Boltzmann simulations of liquid-gas and binary fluid systems. In: *Phys. Rev. E* 54 (1996), Nov., Nr. 5, 5041–5052
- [100] Aidun, C. K. ; Clausen, J. R.: Lattice-Boltzmann method for complex flows. In: *Annual Review of Fluid Mechanics* 42 (2010), Nr. 1, 439–472
- [101] Chen, S. ; Doolen, G. D.: Lattice Boltzmann method for fluid flows. In: *Annual Review of Fluid Mechanics* 30 (1998), Nr. 1, 329–364
- [102] Nourgaliev, R. R. ; Dinh, T. N. ; Theofanous, T. G. ; Joseph, D.: The lattice Boltzmann equation method: Theoretical interpretation, numerics and implications. In: *International Journal of Multiphase Flow* 29(1) (2003), 117
- [103] Huang, H. ; Wang, L. ; Lu, X.: Evaluation of three lattice Boltzmann models for multiphase flows in porous media. In: *Computers & Mathematics with Applications* 61 (2011), Nr. 12, 3606–3617
- [104] Yuan, P. ; Schaefer, L.: Equations of state in a lattice Boltzmann model. In: *Physics of Fluids* 18 (2006), Nr. 4, 042101
- [105] Falcucci, G. ; Bella, G. ; Shiatti, G. ; Chibbaro, S. ; Sbragaglia, M. ; Succi, S.: Lattice Boltzmann models with mid-range interactions. In: *Communications in computational physics* 2 (2007), 1071–1084
- [106] Kuzmin, A. ; Mohamad, A. A.: Multirange multi-relaxation time Shan-Chen model with extended equilibrium. In: *Computers & Mathematics with Applications* 59 (2010), Nr. 7, 2260–2270
- [107] Kang, Q. ; Zhang, D. ; Chen, S.: Displacement of a two-dimensional immiscible droplet in a channel. In: *Physics of Fluids* 14 (2002), Nr. 9, 3203–3214
- [108] Shan, X. ; Doolen, G. D.: Diffusion in a multicomponent lattice Boltzmann equation model. In: *Phys. Rev. E* 54 (1996), Okt., Nr. 4, 3614–3620

- [109] Zhang, R. ; He, X. ; Doolen, G. ; Chen, S.: Surface tension effects on two-dimensional two-phase Kelvin-Helmholtz instabilities. In: *Advances in Water Resources* 24 (2001), Nr. 3–4, 461–478
- [110] Bear, J.: *Dynamics of fluids in porous media*. New York : American Elsevier, 1972 (Environmental science series)
- [111] Hussaini, I. S. ; Wang, C. Y.: Measurement of relative permeability of fuel cell diffusion media. In: *Journal of Power Sources* 195 (2010), Nr. 12, 3830–3840
- [112] Koponen, A. ; Kataja, M. ; Timonen, J.: Tortuous flow in porous media. In: *Phys. Rev. E* 54 (1996), Juli, 406–410
- [113] Whitaker, S.: Derivation and application of the Stefan-Maxwell equations. In: *Revista Mexicana de Ingeniería Química* 8 (2009), Nr. 3, 213–244
- [114] Christen, D. S.: *Praxiswissen der chemischen Verfahrenstechnik*. 2. bearbeitete und ergänzte Auflage. Berlin : Springer, 2010
- [115] Mu, D. ; Liu, Z.-S. ; Huang, C. ; Djilali, N.: Prediction of the effective diffusion coefficient in random porous media using the finite element method. In: *Journal of Porous Materials* 14 (2007), Nr. 1, 49–54
- [116] Forum, MPI: *MPI*. Version 2.2. Stuttgart : High-Performance Computing Center Stuttgart, 2009
- [117] Keuler, S.: *Parallele Implementierung einer Lattice-Boltzmann-Simulation von Gas-Diffusion-Layern für Brennstoffzellen*. Bachelorarbeit, 2011
- [118] Kapitel L Druckverlust in durchströmten Röhren. In: Kast, W.: *VDI-Wärmeatlas*. Berlin : Springer Vieweg, 2013, 1223–1227
- [119] Herwig, Heinz: *Strömungsmechanik*. Wiesbaden : Vieweg+Teubner Verlag / GWV Fachverlage GmbH, 2008
- [120] White, F. M.: *Viscous fluid flow*. 2. ed. New York : McGraw-Hill, 1991 (McGraw-Hill series in mechanical engineering)
- [121] Vielstich, W. (Hrsg.): *Fuel cell technology and applications ; part 1*. Chichester : Wiley, 2003
- [122] Wang, Y. ; Cho, S. ; Thiedmann, R. ; Schmidt, V. ; Lehnert, W. ; Feng, X.: Stochastic modeling and direct simulation of the diffusion media for polymer electrolyte fuel cells. In: *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53 (2010), Nr. 5–6, 1128–1138
- [123] Xu, P. ; Yu, B.: Developing a new form of permeability and Kozeny–Carman constant for homogeneous porous media by means of fractal geometry. In: *Advances in Water Resources* 31 (2008), Nr. 1, 74–81
- [124] Stoyan, D. ; Kendall, W. S. ; Mecke, J.: *Stochastic geometry and its applications*. Chichester : J. Wiley & Sons, 1995

- [125] Schindelin, J. ; Arganda-Carreras, I. ; Frise, E. ; Kaynig, V. ; Longair, M. ; Pietzsch, T. ; Preibisch, S. ; Rueden, C. ; Saalfeld, S. ; Schmid, B. ; Tinevez, J.-Y. ; White, D. J. ; Hartenstein, V. ; Eliceiri, K. ; Tomancak, P. ; Cardona, A.: Fiji: an open-source platform for biological-image analysis. In: *Nat Meth* 9 (2012), Nr. 7, 676–682
- [126] Shapiro, S. S. ; Wilk, M. B.: An analysis of variance test for normality (complete samples). In: *Biometrika* 52 (1965), Nr. 3/4, 591–611
- [127] Schmidt, J. W.: Staircase algorithm and construction of convex spline interpolants up to the continuity  $C^3$ . In: *Computers and Mathematics with Applications* 31 (1995), Nr. 4, 67–79
- [128] Winkelmann, J.: Diffusion of water (1); air (2). In: Lechner, M. D. (Hrsg.): *Gases in gases, liquids and their mixtures* Bd. 15A. Springer Berlin Heidelberg, 2007, 1370–1370



# A. Physikalische Größen auf dem Gitter

Um die makroskopischen Größen auf dem Gitter zu implementieren, ist es zweckmäßig, die makroskopischen Eingangsgrößen von SI-Einheiten in Gittereinheiten zu überführen, die die Implementierung des Algorithmus übersichtlicher gestaltet. So werden außerdem sehr kleine und sehr große Zahlen vermieden und somit die Numerik des Programms verbessert. Die Schrittweite  $\delta x$  wird dabei durch das Gitter mit  $N$  Gitterpunkten, die auf einer Referenzlänge  $L_{\text{ch}}$  liegen, gegeben:

$$\frac{L_{\text{ch}}}{N} = \delta x \quad . \quad (\text{A.1})$$

Die Ortsschrittweite  $\delta x$  ist in Beziehung zur Zeitschrittweite  $\delta t$  und der molekularen Einheitsgeschwindigkeit  $\xi_0$  festgelegt durch Gleichung (3.24). Über die makroskopischen Größen, die spezifische Gaskonstante  $R$  und die Temperatur  $T$ , die auch in der Diskretisierung der Gleichgewichtsverteilung in Gleichung (3.26) auftauchen, werden Bedingungen an das Gitter gestellt, für die dann die Gleichgewichtsverteilung mit Berücksichtigung eines Fehlers hergeleitet wird. Dazu wird die Referenzgeschwindigkeit  $c_s$  eingeführt, die thermodynamisch einer isothermen Schallgeschwindigkeit entspricht<sup>1</sup>

$$c_s = \sqrt{RT} \quad . \quad (\text{A.2})$$

Aus den Momenten der Gleichgewichtsverteilung in den Gleichungen (3.27)-(3.28) ergibt sich der unmittelbare Zusammenhang zwischen der Einheits-Molekülgeschwindigkeit und der isothermen Schallgeschwindigkeit, wie bereits in Gleichung (3.31) mit  $c_s/\xi_0 = 1/\sqrt{3}$  definiert. Die isotherme Schallgeschwindigkeit ist damit ein Referenzwert für die mittlere Geschwindigkeit der Moleküle. Über diese Referenzgeschwindigkeit ist es nun möglich, die bekannten physikalischen Größen eines Systems auf dem Gitter darzustellen und zu implementieren. Dazu ist es sinnvoll Gittereinheiten (l.u.) einzuführen. Diese bezüglich der örtlichen und zeitlichen SI-Einheit dimensionslosen Einheiten ergeben sich durch die Normierung der physikalisch relevanten Größen auf dem Gitter, für die jeder Zeitschritt und jeder Ortsschritt eins gesetzt wird. Dies erfordert die Rücktransformation am Ende des Algorithmus. Explizit ist die Transformation in Gittereinheiten im Folgenden für die relevanten Gittergrößen ausgeführt. Zunächst wird der Ortsschritt auf eins gesetzt:

$$\frac{\delta x}{N/L_{\text{ch}}} = \delta x_{\text{lat}} \equiv 1 \text{ l.u.} \quad . \quad (\text{A.3})$$

Auch der Zeitschritt wird eins gesetzt. Die Umrechnung aus den SI-Einheiten lautet:

$$\delta t \frac{\xi_0}{\delta x} = \delta t_{\text{lat}} \equiv 1 \text{ l.u.} \quad . \quad (\text{A.4})$$

<sup>1</sup>Historisch hat Newton dies als Schallgeschwindigkeit angenommen und dabei nicht berücksichtigt, dass die Ausbreitung des Schalls im Medium nicht isotherm erfolgt [37].

Die Einheits-Molekülgeschwindigkeit in normierter Form wird zu

$$\xi_{0,\text{lat}} = \xi_0 \frac{\delta t}{\delta x} = \frac{\delta x_{\text{lat}}}{\delta t_{\text{lat}}} = 1 \text{ l.u.} \quad . \quad (\text{A.5})$$

Die isotherme Schallgeschwindigkeit in Gleichung (3.31) in dimensionslosen Größen ist

$$c_{s,\text{lat}} = \frac{c_s}{\xi_0} = \frac{1}{\sqrt{3}} \text{ l.u.} \quad (\text{A.6})$$

In dimensionslosen Größen ergibt sich für die makroskopische Eingangsgröße Viskosität aus der Beziehung  $\nu = \eta/\varrho$ :

$$\nu_{\text{lat}} = \nu \frac{\delta t}{\delta x^2} \quad . \quad (\text{A.7})$$

Die Gleichung (3.33) wird damit zu

$$\omega_{\text{lat}} = \frac{c_{s,\text{lat}}^2}{\nu_{\text{lat}} + \delta t_{\text{lat}} \cdot c_{s,\text{lat}}^2/2} \quad . \quad (\text{A.8})$$

Die Strömungsgeschwindigkeit  $v_{\text{ref}}$ , welche sich aus (3.28) ergibt, stellt sich in ihrer normierten Form wie folgt dar

$$v_{\text{ref, lat}} = \frac{v_{\text{ref}}}{\xi_0} \quad . \quad (\text{A.9})$$

Bisher wurden die Orts- und Zeitkoordinate in l.u.-Einheiten überführt. Die Dichte  $\varrho$  enthält außerdem die Masse als SI-Einheit, die, mit der Einführung der Einheitsdichte  $\delta\varrho$

$$\varrho_{\text{lat}} = \varrho \frac{\delta x^3}{\delta\varrho} \equiv 1 \text{ l.u.} \quad (\text{A.10})$$

ebenfalls zu l.u.-Einheiten übergeht. Die Massendichte  $\varrho$  und der Druck  $p$  hängen über das ideale Gasgesetz in Gleichung (3.30) zusammen und es gilt auf dem Gitter:

$$p_{\text{lat}} = 3\varrho_{\text{lat}} \quad . \quad (\text{A.11})$$

Die relevanten Gittergrößen sind nach der Transformation in Gittergrößen in der Größenordnung eins. Dies ist ein Vorteil in der Fehlerüberprüfung des Programms: Aus der Definition der Machzahl in Gleichung (3.25) beispielsweise ergibt sich, dass für die makroskopische Geschwindigkeit immer gelten muss

$$v_{\text{ref, lat}} \ll \frac{1}{\sqrt{3}} \quad . \quad (\text{A.12})$$

## B. Matrizen und Eigenwerte im MRT-Algorithmus

Die Eigenwerte für die Matrix  $\hat{S}$  werden wie folgt gewählt:

$$\begin{aligned}\lambda_0 &= \lambda_3 = \lambda_5 = \lambda_7 = 0 \\ \lambda_1 &= \lambda_2 = \lambda_9 = \lambda_{10} = \lambda_{11} = \lambda_{12} = \lambda_{13} = \lambda_{14} = \lambda_{15} = \omega_\sigma \\ \lambda_4 &= \lambda_6 = \lambda_8 = \lambda_{16} = \lambda_{17} = \lambda_{18} = 8[(2 - \omega_\sigma)/(8 - \omega_\sigma)]\end{aligned}\quad (B.1)$$

Die Matrizen  $M$  und  $M^{-1}$  sind gemäß der Notation in dieser Arbeit wie folgt definiert:



$$M = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ -30 & -11 & 8 & -11 & 8 & -11 & 8 & -11 & 8 & -11 & 8 & 8 & 8 & 8 & -11 & 8 & 8 & 8 & 8 \\ 12 & -4 & 1 & -4 & 1 & -4 & 1 & -4 & 1 & -4 & 1 & 1 & 1 & 1 & -4 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 & -1 & -1 & -1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & -4 & 1 & 0 & -1 & 4 & -1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & -1 & -1 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & -4 & 1 & 0 & -1 & 4 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 4 & -1 & -1 & -1 & -1 & -4 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 2 & 1 & -1 & 1 & 2 & 1 & -1 & 1 & -1 & 1 & -2 & 1 & -2 & -1 & 1 & -2 & 1 & -2 \\ 0 & -4 & 1 & 2 & 1 & -4 & 1 & 2 & 1 & 2 & 1 & -2 & 1 & -2 & 2 & 1 & -2 & 1 & -2 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 1 & 1 & 1 & -1 & -1 & 0 & -1 & 0 & -1 & -1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & -2 & 1 & 0 & 1 & -2 & 1 & 2 & -1 & 0 & -1 & 0 & 2 & -1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & -1 & 1 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 \end{pmatrix} \quad (\text{B.2})$$





# Abkürzungsverzeichnis

## Akronyme

APU	Hilfstriebwerk - <i>auxiliary power unit</i>
BGK	Bhatnagar-Gross-Krook
CFD	Numerische Strömungsmechanik - <i>computational fluid dynamics</i>
GDL	Gasdiffusionsschicht - <i>gas diffusion layer</i>
HOR	Wasserstoffoxidationsreaktion - <i>hydrogen oxydation reaction</i>
HT-PEFC	Hochtemperatur-Polymerelektrolytbrennstoffzelle - <i>high temperature polymer electrolyte fuel cell</i>
JSC	Jülich Supercomputing Center
l.u.	Gitter-Einheit - <i>lattice unit</i>
LB	Lattice-Boltzmann
MPL	Mikroporöse Schicht - <i>microporous layer</i>
MPI	<i>message passing interface</i>
MRT	<i>multi-relaxation-time</i>
MTPM	<i>mean transport pore-model</i>
ORR	Sauerstoffreduktionsreaktion - <i>oxygen reduction reaction</i>
PEFC	Polymerelektrolytbrennstoffzelle - <i>polymer electrolyte fuel cell</i>
REV	Repräsentatives Elementarvolumen
SC	Shan-Chen
SOFC	Festoxidbrennstoffzelle - <i>solid oxide fuel cell</i>
SRT	<i>single-relaxation-time</i>

## Griechische Formelzeichen

$\alpha$	Name der Vlies-Realdaten-Geometrie
$\beta$	Name des Vlies-Modells
$\gamma$	Name des Toray-Modells
$\delta x$	Ortsdiskretisierung - Ortsschritt auf dem Gitter
$\delta t$	Zeitdiskretisierung - Zeitschritt auf dem Gitter
$\delta \rho$	Dichtediskretisierung - Einheitsdichte auf dem Gitter
$\delta_{\alpha\beta}$	Kronecker-Delta
$\Delta x$	Länge des Simulationsgebiets in $x$ -Richtung
$\Delta p_{\text{ref}}$	aus der Literatur berechneter Referenz-Druckgradient
$\Delta p_{\text{sim}}$	simulierter Druckgradient
$\eta$	dynamische Viskosität
$\kappa$	Permeabilität
$\kappa_{\text{sim}}$	simulierte Permeabilität
$\kappa_{\text{ref}}$	simulierte Referenz-Permeabilität im leeren Kanal
$\lambda$	Eigenwert
$\mu$	Moment
$\nu$	kinematische Viskosität
$\nu_{\text{alt}}$	kinematische Viskosität vor der numerischen Anpassung im Algorithmus
$\nu_{\text{neu}}$	kinematische Viskosität nach der numerischen Anpassung im Algorithmus
$\omega$	Kollisionsfrequenz
$\Omega$	Kollisionsoperator des BGK-Algorithmus
$\Phi$	Porosität
$\Phi_{\text{lok}}$	lokale Porosität
$\phi$	Parameter im stochastischen GDL-Modell (filling of pores)
$\varphi$	experimentelle Konstante bei der Berechnung des Druckgradienten im Rohr
$\Psi$	Parameter im MTPM
$\psi$	effektive Masse im SC-Modell
$\varrho$	Massendichte

---

$\varrho_0$	Eingangsdichte
$\sigma$	relative Standardabweichung
$\sigma$	Index zur Bezeichnung von Komponenten
$\tau$	Kollisionszeit
$\tau$	Tortuosität
$\chi$	Stöchiometriefaktor
$\vec{\xi}$	Molekülgeschwindigkeit
$\xi_0$	molekulare Einheitsgeschwindigkeit

## Lateinische Formelzeichen

$A$	Querschnittsfläche
$A_c$	Wirkungsquerschnitt
$a$	Schallgeschwindigkeit
$\vec{c}$	thermische Molekülgeschwindigkeit
$c_s$	isotherme Schallgeschwindigkeit
$c^x$	Konzentration
$D$	Diffusionskoeffizient
$D_{\text{eff}}$	effektiver Diffusionskoeffizient
$D$	Dimension
$D$	Darcy (Einheit)
$d$	Querschnitt der Geometrie
$d_{\text{hyd}}$	hydraulischer Durchmesser
$F$	Faradaykonstante
$F$	(externe) Kraft
$FL$	Faserlegung
$f$	Ungleichgewichtsverteilung
$f^{\text{eq}}$	Gleichgewichtsverteilung
$\vec{g}$	Relativgeschwindigkeit
$H$	Boltzmann-Funktional

$H$	Sphärische Kontaktverteilung
$I$	Elektrische Stromstärke
$J$	Massenstromdichte
$J^{\text{st}}$	Stoffstromdichte
$K$	Kompressionsgrad
$K_n$	Knudsenzahl
$L_{\text{ch}}$	charakteristische Länge
$L_{\text{hyd}}$	hydraulische Einlaufänge
lat	Index zur Bezeichnung von Gittergrößen
$l_f$	mittlere freie Weglänge
$M$	Momenten-Matrix im MRT-Modell
$M$	molare Masse
$Ma$	Machzahl
$m$	Masse
$\dot{m}$	Massenstrom
$N$	Teilchenzahl
$\dot{n}$	Molenstrom
$Pe$	Pécletzahl
$PR$	Porenraum
$PV$	Porenradienverteilung
$p$	Druck
$p_{\sigma}$	Partialdruck
$\bar{p}_{\text{fix}}$	mittlerer Druck der mittleren Schicht zur Berechnung der simulierten Druckdifferenzen
$Q$	Ladung
$Q$	Durchflussrate
$Q$	Anzahl der Bewegungsrichtungen im Gitter
$R$	spezifische Gaskonstante
$R$	Porenradius
$\hat{R}$	mittlerer Porenradius

---

$Re$	Reynoldszahl
$\vec{r}$	Ort
$r$	Kapillarradius im MTPM
$S$	Basisvektoren-Matrix im MRT-Modell
$\hat{S}$	diagonalisierte Matrix $S$
$T$	Temperatur
$T_{\text{ref}}$	Referenzzeit
$t$	Zeit
$t_p$	Gewichtungsfaktor mit Index $p$
$U$	Umfang
$\vec{u}$	Diffusionsgeschwindigkeit
$V$	Volumen
$V_{\text{solid}}$	Volumen des Feststoffs
$V_{\text{pore}}$	Volumen des Porenraums
$\vec{v}$	makroskopische Geschwindigkeit
$\vec{v}_{\text{vor}}$	Geschwindigkeit vor der Reflexion an der Wand
$\vec{v}_{\text{nach}}$	Geschwindigkeit nach der Reflexion an der Wand
$v_{\text{alt}}$	Geschwindigkeit vor der numerischen Anpassung im Algorithmus
$v_{\text{neu}}$	Geschwindigkeit nach der numerischen Anpassung im Algorithmus
$\vec{v}'$	Gesamtgeschwindigkeit im SC-Algorithmus
$v_0$	Eingangsgeschwindigkeit
$\vec{v}_{\text{Gem}}$	Geschwindigkeit eines Gemischs
$v_{\text{ref}}$	Referenzgeschwindigkeit
$v_{x\text{ref}}$	Referenzgeschwindigkeit in $x$ -Richtung
$\vec{v}_x^{\text{line}}$	Geschwindigkeit in $x$ -Richtung gemittelt über die $y$ -Richtung
$z$	Ladungszahl des ausgetauschten Ions





# Abbildungsverzeichnis

2.1. Schematische Darstellung der HT-PEFC. . . . .	4
3.1. Querschnitt des Tomogramms der Probe einer GDL-Struktur aus komprimiertem Vlies-Material [5], die sich in einer Kanal-Steg-Geometrie unter Anpressdruck befindet. . . . .	7
3.2. Relative Häufigkeitsverteilung von $R$ ausgedrückt durch die sphärische Kontaktverteilung $H(R)$ . Sie gibt an, wie wahrscheinlich es ist, von einem zufällig ausgewählten Punkt im Porenraum, im kürzesten Abstand $R$ zum Feststoff zu gelangen. Zu sehen ist die Verteilung der unkomprimierten Realdaten. . . . .	8
3.3. REM-Bilder der beiden in dieser Arbeit untersuchten GDL-Geometrien. . . . .	9
3.4. U-J-Kennlinie einer HT-PEFC. Gemessen am IEK-3 des Forschungszentrums Jülich. . . . .	11
3.5. Eindimensionale Maxwell-Verteilung für Sauerstoff und Wasserstoff für die Betriebstemperatur der HT-PEFC von 160 °C. Aufgetragen ist die auf die Teilchendichte normierte Wahrscheinlichkeit $f_i^{\text{eq}}(c_i)/n$ über die thermische Molekülgeschwindigkeit in eine Raumrichtung $c_i$ . . . . .	18
3.6. Darstellung des diskretisierten Phasenraums im $D3Q19$ Gitter. . . . .	21
4.1. Einlesen der binarisierten Bilder im Programm Julabos am Beispiel eines GDL-Materials. Durch die eingelesene Geometrie entsteht ein kubisches dreidimensionales Gitter. . . . .	33
4.2. Die Werte der Tortuosität während einer LB-Simulation sind über die Zeitschritte aufgetragen. Es ist ein Vergleich von MRT-Simulationen für verschiedene $\omega$ gezeigt. . . . .	34
5.1. Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Ein rechteckiger leerer Kanal wird mit Wasserstoff durchströmt. Ein konstantes Geschwindigkeits-Profil $v_0$ ist am Eingang vorgegeben, am Ausgang eine konstante Dichte $\varrho_0$ . An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. . . . .	39
5.2. Die Abbildung zeigt den Druckverlauf der Wasserstoff-Strömung durch einem leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt. Die Abmessungen des Kanals sind 1000 l.u. $\times$ 100 l.u. $\times$ 100 l.u.. Die Mittelwerte des Druckes für die einzelnen Schichten in Flussrichtung $x$ sind jeweils normiert auf den Referenzwert gemäß Gleichung 5.1. Es sind je 200 l.u. zu sehen, links für den Einlassbereich, rechts für den Auslassbereich. Die Abbildung gilt für die Algorithmen SRT und MRT. . . . .	40
5.3. Farbige Darstellung der Geschwindigkeitsbeträge in Flussrichtung $v_x$ für eine LB-Simulation der Wasserstoff-Strömung durch ein Rohr mit rechteckigem Querschnitt. Die Abmessungen des Rohrs sind 1000 l.u. $\times$ 100 l.u. $\times$ 100 l.u. (1,5 mm $\times$ 0,15 mm $\times$ 0,15 mm). . . . .	41

5.4. Normierte Geschwindigkeit in einem Kanal mit rechteckigem Querschnitt für $\omega = 1,2$ l.u.. Das Profil ist dargestellt in $z$ -Richtung an der Stelle $(\frac{1}{2} \Delta x, \frac{1}{2} \Delta y)$ . Aufgetragen ist die auf die Eingangsgeschwindigkeit normierte Geschwindigkeit für die verschiedenen Auflösungen des Rohrquerschnittes $d$ . . . . .	42
5.5. Normierte Geschwindigkeit für einen Kanal mit der Auflösung $30$ l.u. $\times$ $3$ l.u. $\times$ $3$ l.u. verglichen mit der analytischen Lösung für verschiedene Werte von $\omega$ . Die Werte sind über die $z$ -Koordinate, also senkrecht zur Fließrichtung, aufgetragen. Die Koordinaten der Simulationen sind skaliert auf einen Querschnitt der Länge $d = 100$ l.u.. Abbildung 5.5a zeigt das Ergebnis für den SRT-, Abbildung 5.5b für den MRT-Algorithmus. . . . .	43
5.6. LB-Simulationen einer Wasserstoff-Strömung durch einen leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt. Die normierte Permeabilität ist aufgetragen über die Gitterauflösungen des Querschnitts für verschiedene Kollisionsparameter $\omega$ . Abbildung 5.6a zeigt den Verlauf für den SRT-, Abbildung 5.6b für den MRT-Algorithmus. . . . .	45
5.7. LB-Ergebnisse der Wasserstoff-Strömung durch einen leeren Kanal mit rechteckigem Querschnitt $d$ . Aufgetragen ist die normierte Permeabilität über den Kollisionsparameter $\omega$ für verschiedene Gitterauflösungen. Vergleichend sind die Simulationen mit dem SRT-Algorithmus in Abbildung 5.7a und dem MRT-Algorithmus in Abbildung 5.7b gezeigt. . . . .	46
5.8. Schematische Darstellung der Strömungssimulation in der GDL. Wasserstoff strömt entlang einer GDL in einem Kanal rechteckigen Querschnitts. Ein konstantes Geschwindigkeits-Profil ist am Eingang vorgegeben, eine konstante Dichte am Ausgang. Es ist jeweils ein Vorlauf beziehungsweise Nachlauf der Geometrie hinzugefügt. . . . .	48
5.9. Beispiele der in der Arbeit verwendeten Geometrien. . . . .	49
5.10. Kollisionsparameter-Abhängigkeit der Kennzahlen im Vlies-Material $\beta$ I mit den Abmessungen $110$ l.u. $\times$ $500$ l.u. $\times$ $500$ l.u. für die beiden Algorithmen SRT und MRT. Der Gitterabstand ist von $dx = 1,75$ l.u. bei einem Vorlauf und Nachlauf von je $30$ l.u.. In Abbildung 5.10a ist die Permeabilität, in Abbildung 5.10b die Tortuosität zu sehen. . . . .	51
5.11. Typischer $xy$ -Querschnitt einer Strömungssimulation, der die Geschwindigkeitsbeträge in Flussrichtung $v_x$ für das Vlies-Modell $\beta$ II zeigt. . . . .	52
5.12. Absolute Permeabilität der GDL $\beta$ I mit der Größe $110$ l.u. $\times$ $500$ l.u. $\times$ $500$ l.u. ( $193 \mu\text{m} \times 875 \mu\text{m} \times 875 \mu\text{m}$ ) für verschiedene Vor- und Nachlauf-Breiten bei einem Gitterabstand von $1,75 \mu\text{m}$ . . . . .	53
5.13. Absolute Permeabilität der GDL $\beta$ II in einem Querschnitt von $600$ l.u. $\times$ $600$ l.u. ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) bei einer Auflösung von $0,876 \mu\text{m}$ für verschiedene Schichtdicken. Vor- und Nachlauf betragen je $30$ l.u. ( $26 \mu\text{m}$ ). . . . .	54
5.14. Histogramm der Permeabilitäten des jeweiligen Materials. In Abbildung 5.14a beträgt die GDL-Dicke $120$ l.u. ( $180 \mu\text{m}$ ) mit $1,5 \mu\text{m}$ und in Abbildung 5.14b beträgt sie $200$ l.u. ( $175 \mu\text{m}$ ) bei einer Auflösung von $0,876 \mu\text{m}$ . Der Querschnitt ist $512$ l.u. $\times$ $512$ l.u. ( $768 \mu\text{m} \times 768 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14a und $600$ l.u. $\times$ $600$ l.u. ( $526 \mu\text{m} \times 526 \mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.14b. Die grüne Linie ist der Mittelwert. . . . .	55

5.15. Histogramm der Tortuositäten für die verschiedenen Simulationen des jeweiligen Materials. Die grüne Linie gibt den Mittelwert an. In Abbildung 5.15a beträgt die GDL-Dicke 120 l.u. (180 $\mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von 1,5 $\mu\text{m}$ und in Abbildung 5.15b beträgt sie 200 l.u. (175 $\mu\text{m}$ ) bei einem Gitterabstand von 0,876 $\mu\text{m}$ . Der Querschnitt ist 512 l.u. $\times$ 512 l.u. (768 $\mu\text{m}$ $\times$ 768 $\mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.15a und 600 l.u. $\times$ 600 l.u. (526 $\mu\text{m}$ $\times$ 526 $\mu\text{m}$ ) in Abbildung 5.15b. . . . .	56
5.16. Geschwindigkeiten $v_x$ für ausgewählte Bereiche einer LB-Simulation in der Geometrie $\beta$ II. Der rote Kasten weist auf ein schlecht durchströmtes Gebiet, der gelbe Kasten deutet auf ein starke Strömung jeweils relativ zur mittleren Strömungsgeschwindigkeit hin. . . . .	57
5.17. Das Schema zeigt den Zusammenhang zwischen dem stochastischen Modellparameter $\phi$ und den Realisierungen $\beta$ des Materials, deren jeweilige Geometrien, durch die schwarzen Kästen dargestellt, stochastisch äquivalent sind und einige makroskopische Eigenschaften teilen. Ziel des Kapitels ist es, den Zusammenhang zwischen den Realisierungen und Strömungseigenschaften zu verstehen. . . . .	61
5.18. Zweidimensionaler Querschnitt von verschiedenen, in Strömungsrichtung symmetrischen Geometrien, für die die simulierten Strömungs-Kennzahlen in Tabelle 5.3 zusammengefasst sind. . . . .	62
5.19. Beispiel einer der Geometrien aus Abbildung 5.18, in denen die LB-Richtung in Pfeilrichtung durchgeführt wird. Die schwarz-weißen Bilder sind übereinandergestapelt und ein Vorlauf beziehungsweise ein Nachlauf sind hinzugefügt. Die Anzahl der Bilder ist nur schematisch. Die Simulationen werden in einem 300 l.u. $\times$ 100 l.u. $\times$ 100 l.u. Gitter durchgeführt mit einem Vorlauf und Nachlauf von je 100 l.u.. Der Gitterabstand ist 1,5 $\mu\text{m}$ . . . . .	63
5.20. Vergleich der Porosität der Geometrien $\alpha$ (Realdaten) und $\beta$ II (Modell) für die einzelnen $yz$ -Schichten in $x$ -Richtung. . . . .	65
5.21. Relative Häufigkeitsverteilung von $R$ ausgedrückt durch die sphärische Kontaktverteilung $H(R)$ . Sie gibt an, wie wahrscheinlich es ist, von einem zufällig ausgewählten Punkt im Porenraum im kürzesten Abstand $R$ zum Feststoff zu gelangen. Aufgetragen sind verschiedene Realisierung der Vlies-Geometrie $\beta$ und die Realdaten. . . . .	67
5.22. Die Permeabilitäten aufgetragen über den Querschnitt $d$ der jeweiligen Simulation. Die makroskopischen Abmessungen aller Simulationen ist konstant, nur die Skalierung (Gitterauflösung) ändert sich. Verglichen ist eine Simulation der Realdaten mit einer Stichprobe mit dem Stichprobenumfang $N = 10$ für das Modell der Geometrie $\beta$ II. . . . .	71
5.23. Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Wasserstoff gelangt über den Kanal in die GDL. Hier wird er durch die poröse Struktur unter den Steg getragen, sodass er über die gesamte Fläche an der Elektroden-seite austritt. Es wurde ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. An der Kanalseite wird eine Geschwindigkeit, an der Elektroden-seite eine Massendichte vorgegeben. An allen Rändern und Grenzen zum Fasermaterial werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. . . . .	75
5.24. Tomogramm einer Probe der Geometrie $\alpha$ für die Kompressionsstufen 0 %, 10 %, 18 % und 29 % (von oben nach unten). Entnommen aus [5]. . . . .	76
5.25. Geschwindigkeits-Profil der $yz$ -Ebene an der Elektroden-seite einer Kanal-Steg-Geometrie. Verglichen ist eine unkomprimierte GDL mit einer um 29 % komprimierten GDL. . . . .	77

5.26. Vergleich der Kanal-Steg-Geometrie $\alpha$ mit und ohne unkomprimierter GDL. Aufgetragen ist der Geschwindigkeits-Mittelwert $\bar{v}_x^{\text{line}}$ über $y$ an der Elektrode. . . . .	78
5.27. Schema, wie sich die non-slip-Randbedingungen auf ein Geschwindigkeits-Profil in einem simulierten (grünen) Bereich in der GDL auswirkt. Die gestrichelte Linie stellt einen möglichen Verlauf des Profils dar und die durchgezogene Linie den simulierten Verlauf. . . . .	79
5.28. Vergleich der Elektrodenschicht einer Kanal-Steg-Geometrie für verschiedene Kompressionsstufen. Aufgetragen ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten $\bar{v}_x^{\text{line}}$ über $y$ an der Elektrode. In Abbildung 5.28a ist eine unkomprimierte GDL mit einer zu $K = 29\%$ komprimierten GDL verglichen. Abbildung 5.28b zeigt die Spline-Funktionen von vier verschiedenen Kompressionsstufen. . . . .	80
5.29. Vergleich von drei Schichten entlang der Flussrichtung einer Kanal-Steg-Geometrie mit und ohne GDL. Aufgetragen ist der Mittelwert der Geschwindigkeiten $\bar{v}_x^{\text{line}}$ über $y$ an den Punkten a) Kanalseite, b) Mitte c) Elektrodenseite. In Abbildung 5.29a ist die GDL zu null Prozent, in Abbildung 5.29b zu 29 % komprimiert. Anstelle der einzelnen Wertepaare sind mit natürlichen kubischen Splines jeweils Gewichtungsfunktionen aufgetragen. . . . .	82
6.1. Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Ein rechteckiger leerer Kanal wird mit Sauerstoff und Wasserdampf durchströmt. Für Wasserdampf ist eine Druck-Randbedingung in eine Richtung angelegt, für Sauerstoff in die andere. An den Seitenrändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. . . . .	87
6.2. Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Eine GDL wird mit Sauerstoff und Wasserdampf durchströmt. Für Wasserdampf ist eine Druck-Randbedingung in eine Richtung angelegt, für Sauerstoff in die andere. An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. . . . .	88
6.3. Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie: Der Kanal-Steg-Übergang einer GDL wird mit Sauerstoff in Richtung Elektrode und Wasserdampf in Richtung Kanal durchströmt. Ein Druckgradient ist jeweils in Strömungsrichtung vorgegeben, der sich an einem typischen Massenstrom einer HT-PEFC orientiert. An den Rändern werden Bounce-Back-Randbedingungen angenommen. Es ist ein Vorlauf und ein Nachlauf hinzugefügt. . . . .	89
6.4. Vergleich einer Kanal-Steg-Geometrie $\alpha$ für die Zweikomponenten-Strömung Sauerstoff/Wasserdampf an der Kathode der HT-PEFC. Aufgetragen ist der Betrag der mittleren Geschwindigkeit $\bar{v}_x^{\text{line}}$ über $y$ für beide Komponenten bei einer Stromdichte von $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$ . . . . .	91
6.5. Vergleich einer Kanal-Steg-Geometrie $\alpha$ für die Zweikomponenten-Strömung Sauerstoff/Wasserdampf an der Kathode der HT-PEFC. Aufgetragen ist der Betrag der mittleren Geschwindigkeit $\bar{v}_x^{\text{line}}$ über $y$ für die drei Stromdichten $J = 0,2 \text{ A cm}^{-2}$ , $J = 0,5 \text{ A cm}^{-2}$ und $J = 0,8 \text{ A cm}^{-2}$ für Sauerstoff in Abbildung 6.5a und für Wasserdampf in Abbildung 6.5b. . . . .	92

# Tabellenverzeichnis

3.1. Übersicht der Eingangsparameter für die Gasströmung an Anode und Kathode der HT-PEFC. Als Betriebstemperatur wird 160 °C angenommen, wenn nicht anders angegeben. Die Stoffwerte sind aus [32,33]. . . . .	13
3.2. Strömungsbereiche klassifiziert nach der Knudsenzahl aus [37]. . . . .	14
3.3. Schema des LB-Algorithmus: . . . . .	23
3.4. Schema des LB-Algorithmus mit Erweiterung um das SC-Modell - die Erweiterung ist in blau dargestellt: . . . . .	30
5.1. Werte der normierten Geschwindigkeiten in einem leeren Kanal mit der Abmessung 30 l.u. × 3 l.u. × 3 l.u. für die beiden Algorithmen SRT und MRT. . . . .	42
5.2. Übersicht der Ergebnisse für die LB-Strömungssimulationen in verschiedenen Materialien und Vergleich mit Literaturwerten. Alle Werte mit relativen Standardabweichungen sind Mittelwerte von mehreren Simulationen einer Realisierung. Der Wert, um die die Literatur-Materialien komprimiert sind, ist jeweils als tiefgestellter Index notiert. Die Einheiten der Permeabilität sind in Darcy angegeben. . . . .	58
5.3. Zusammenfassung der Strömungs-Kennzahlen für die Geometrien in Abbildung 5.18. Dargestellt sind die Tortuosität $\tau$ , die Permeabilität $\kappa$ , der mittlere Porenradius $\bar{R}$ , die Porenradienverteilung und die Anordnung der Fasern. . . . .	62
5.4. Simulierte Strömungs-Kennzahlen verschiedener Realisierungen der Geometrie $\beta$ verglichen mit dem jeweiligen mittleren Porenradius. . . . .	66
5.5. Simulierte Strömungs-Kennzahlen verschiedener Realisierungen der Geometrie $\beta$ . Die Variation von $\tau$ bei gleichem Porenradius steht hier im Vordergrund. . . . .	68
5.6. Übersicht der Ergebnisse zur MRT/SRT-Abhängigkeit verschiedener $\omega$ für die Geometrie $\beta$ II. . . . .	73
6.1. Übersicht der Eingangsparameter für die Gasströmung an Anode und Kathode der HT-PEFC. Als Betriebstemperatur wird 160 °C angenommen. Die Stoffwerte sind aus [32]. . . . .	87
6.2. Vergleich der Diffusionskoeffizienten für den leeren Kanal (Zeile 1) und dem daraus errechneten effektivem Diffusionskoeffizienten (Zeile 2) mit $\Phi/\tau = 0,66$ . Die dritte Zeile gibt den über Gleichung (6.1) aus der Simulation berechneten Diffusionskoeffizienten an. . . . .	88



# Danksagung

Die Zeit meiner Dissertation und meinen Weg dorthin haben viele Leute geprägt, denen ich hiermit danken möchte. Zunächst danke ich Herrn Professor Lehnert, der sich trotz Bergen voller Dissertationen stets Zeit genommen hat, ob per E-Mail oder im persönlichen Gespräch im Büro, für die gute Betreuung.

Herrn Professor Schmidt danke ich für das Zweitgutachten, die weite Anreise aus Ulm zur Verteidigung und die erfolgreiche Zusammenarbeit. Zudem danke ich Herrn Professor Loosen, dass er den Prüfungsvorsitz übernommen hat und Herrn Professor Stolten für die Gelegenheit zur Promotion an seinem Institut. Das IEK-3 war mein täglicher Umschlagspunkt in den vergangenen drei Jahren und ich fand es schön dort zu arbeiten. Dies lag mitunter an stundenlangen und erhellenden Diskussionen mit Dieter und meinem Betreuer Uwe, die mich, wo sie nur konnten, unterstützten.

Steffi und Julia danke ich für die sehr angenehme Zusammenarbeit und ihre beeindruckende Leistung in unserem Programm. Insgesamt hat mir die Kooperation mit anderen Instituten sehr viel Spaß gemacht und ich danke in diesem Rahmen stellvertretend Gerd Gaiselmann an der Universität Ulm und Dr. Christian Tötzke am HZB.

Schön war es, dass am IEK-3 während der Promotion viele andere Doktoranden in der gleichen Situation waren. Ob im Doktorandenbüro, im BZL oder draußen auf der Bank, auch wegen euch blicke ich gerne auf diese Zeit zurück.

Jen und Anne kriegen natürlich einen extra Absatz und wenn es danach geht, müssten sie ein eigenes Kapitel, wenn nicht eine eigene Arbeit kriegen?

Meine Freunde, zu denen natürlich auch einige der oben genannten Personen zählen, machen einen wichtigen Teil in meinem Leben aus. Es ist schön, wenn man Menschen wie euch irgendwann so kennt, dass man sie nicht mehr hergeben will.

Meine Familie hat mich seit jeher unterstützt und mir zur Seite gestanden. Wenn ich meinen Kindern ein bisschen was von meinen Eltern mitgeben kann und sie ihre Geschwister so mögen wie ich meine, freue ich mich sehr.

Susi möchte ich danken für all ihr Verständnis, das sie mir in den drei Jahren entgegengebracht hat. Auch wenn man es mir vor allem gegen Ende der Dissertation nicht immer anmerkte, weiß ich es zu schätzen, so eine wunderbare Freundin zu haben. Dir Jetty danke ich dafür, dass ich während dieser Zeit lernen durfte, wie es ist, der stolzeste Papa von der süßesten Tochter der Welt zu sein.





Band / Volume 219

**Interaction of Phosphoric Acid with Cell Components  
in High Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells**

F. Liu (2014), i, 147 pp

ISBN: 978-3-89336-972-0

Band / Volume 220

**Machbarkeitsstudie zum Aufbau und Betrieb eines Prüfstandes  
für Antriebsstränge von Windenergieanlagen mit Getriebe im  
Leistungsbereich bis 15 MW am Standort Forschungszentrum Jülich**

(2014), 72 pp

ISBN: 978-3-89336-973-7

Band / Volume 221

**Phenotyping Nannochloropsis gaditana under different conditions  
in controlled photobioreactors in laboratory and upscaled  
photobioreactors in greenhouse**

R. Braun (2014), III, 177 pp

ISBN: 978-3-89336-975-1

Band / Volume 222

**Fundamental processes of plasma and reactive gas surface treatment  
for the recovery of hydrogen isotopes from carbon co-deposits  
in fusion devices**

S. Möller (2014), 99 pp

ISBN: 978-3-89336-977-5

Band / Volume 223

**Analyse der Lichtstreuung zur Textur-Optimierung von Zinkoxid-  
Frontkontakten für Silizium-Dünnschichtsolarzellen**

G. Jost (2014), viii, 203 pp

ISBN: 978-3-89336-978-2

Band / Volume 224

**Luftgestützte Messung von HOx-Radikalkonzentrationen mittels  
Laser-induzierter Fluoreszenz auf einem Zeppelin NT: Untersuchung  
der atmosphärischen Oxidationsstärke der unteren Troposphäre**

S. Gomm (2014), 5, iii, 205 pp

ISBN: 978-3-89336-981-2

Band / Volume 225

**Sorption, Transformation and Transport of Sulfadiazine in a loess  
and a sandy Soil**

S. Sittig (2014), v, 121 pp

ISBN: 978-3-89336-982-9

Band / Volume 226

**A Lagrangian transport core for the simulation of stratospheric trace species in a Chemistry Climate Model**

C. M. Hoppe (2014), vi, 112 pp

ISBN: 978-3-89336-984-3

Band / Volume 227

**Einfluss der Probengröße und der Kornorientierung auf die Lebensdauer einer polykristallinen Ni-Basislegierung bei LCF- Beanspruchung**

T. Seibel (2014), II, 131 pp

ISBN: 978-3-89336-986-7

Band / Volume 228

**Implementation of capillary electromigrative separation techniques coupled to mass spectrometry in forensic and biological science**

T. N. Posch (2014), 264 pp

ISBN: 978-3-89336-987-4

Band / Volume 229

**Mobile Messungen - Messung und Bewertung von Verkehrsemissionen**

C. Ehlers (2014), VII, 136 pp

ISBN: 978-3-89336-989-8

Band / Volume 230

**Data Processing and Trace Gas Retrievals for the GLORIA Limb Sounder**

T. Guggenmoser (2014), xi, 111, XXVI

ISBN: 978-3-89336-993-5

Band / Volume 231

**Assessment of Laser Induced Ablation Spectroscopy (LIAS) as a method for quantitative in situ surface diagnostic in plasma environments**

N. Gierse (2014), 199 pp

ISBN: 978-3-89336-994-2

Band / Volume 232

**Lattice-Boltzmann-Simulation in faserbasierten Mikrostrukturen**

J. P. Brinkmann (2014), viii, 129 pp

ISBN: 978-3-89336-995-9

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zwb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



Die Forschungsaufgaben des Instituts für Energie- und Klimaforschung – Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) sind auf die Realisierung von Hoch- und Niedertemperaturbrennstoffzellen sowie von entsprechenden Stacks oder Systemen für stationäre oder mobile Anwendungen ausgerichtet. Ferner umfassen die verfahrens- und systemtechnischen Entwicklungen die Bereitstellung von Apparaten zur Brenngaserzeugung. Darüber hinaus zielt das IEK-3 auf die Bereitstellung von Anlagen zur großtechnischen Erzeugung von Wasserstoff mittels Elektrolyseuren mit Polymerelektrolytmembranen. Für eine tiefgehende Aufklärung von Strukturen und deren Wirkung sowie von energetischen Prozessketten werden die Arbeiten von physikalisch-chemischen Grundlagenuntersuchungen sowie systemanalytischen Studien der Energieverfahrenstechnik begleitet.